



TESIS TK-142541

**DEPOSISI ELEKTROFORESIS UNTUK MEMBUAT  
LAPISAN KOMPOSIT *HYDROXYAPATITE* PADA  
KAWAT *ORTHODONTIC***

**NUR SHIYAMA PURNAMA SARI**

**NRP. 2314201019**

**DOSEN PEMBIMBING :**

**Prof.Dr.Ir.Heru Setyawan,M.Eng**

**PROGRAM MAGISTER**

**BIDANG KEAHLIAN TEKNOLOGI PROSES**

**JURUSAN TEKNIK KIMIA**

**FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI**

**INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER**

**SURABAYA**

**2016**



TESIS TK-142541

# **ELECTROPHORESIS DEPOSITION TO MAKE HYDROXYAPATITE COMPOSITE COATING OF THE ORTHODONTIC WIRE**

**NUR SHIYAMA PURNAMA SARI**

**NRP. 2314201019**

**SUPERVISOR :**

**Prof.Dr.Ir.Heru Setyawan,M.Eng**

**MAGISTER PROGRAM**

**PROCESS OF TECHNOLOGY**

**DEPARTMENT OF CHEMICAL ENGINEERING**

**FACULTY OF INDUSTRIAL TECHNOLOGY**

**INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER**

**SURABAYA**

**2016**

## LEMBAR PENGESAHAN

### DEPOSISI ELEKTROFORESIS UNTUK MEMBUAT LAPISAN KOMPOSIT *HYDROXYAPATITE* PADA KAWAT *ORTHODONTIC*

Tesis ini disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar  
Magister Teknik (MT)

di

Institut Teknologi Sepuluh November Surabaya


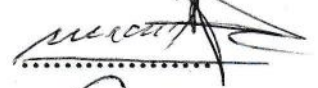
Oleh :

Nur Shiyama Purnama Sari  
NRP. 23 14 201 019

Tanggal Ujian : 14 Juli 2016  
Periode Wisuda : September 2016

Disetujui oleh :

1. Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng (Pembimbing)  
NIP. 1967 02 03 1991 02 1001
2. Prof. Dr. Ir. Ali Altway, M.Sc. (Penguji)  
NIP. 1951 08 04 1974 12 1001
3. Prof. Dr. Ir. Sugeng Winardi, M.Eng (Penguji)  
NIP. 1952 09 16 1980 03 1002
4. Setiyo Gunawan, S.T., Ph.D (Penguji)  
NIP. 1976 03 23 2002 12 1001



Direktur Program Pascasarjana,



Prof. Dr. Djauhar Manfaat, M.Sc, Ph.D  
NIP. 1960 12 02 1987 01 1001

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kehadiran Allah SWT atas rahmat dan hidayahNya sehingga laporan tesis ini terselesaikan dengan baik. Tesis yang berjudul **“Deposisi Elektroforesis untuk Membuat Lapisan Komposit Hydroxyapatite pada Kawat Orthodontic”** disusun untuk memenuhi persyaratan memperoleh gelar Magister Teknik di Program Pascasarjana Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknologi Industri, Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya. \

Ungkapan terima kasih yang tak terhingga penulis haturkan kepada Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M.Eng sebagai pembimbing dan Dr. Widiyastuti, ST. MT sebagai Kepala Lab Elektrokimia dan Korosi Jurusan Teknik Kimia ITS atas bimbingan yang sangat intensif dan bantuan yang tak ternilai harganya pada kelancaran studi kami secara keseluruhan mulai awal studi, penyusunan proposal, selama proses penelitian, hingga tersusunnya tesis ini. Ucapan terima kasih yang tak terhingga juga, penulis sampaikan kepada Prof. Dr. Ir. Ali Altway, M.Sc., Prof. Dr. Ir. Sugeng Winardi, M.Eng, dan Setiyo Gunawan, S.T., Ph.D atas segala saran dan masukannya yang sangat berarti mulai sidang proposal sampai sidang tesis. Dan tidak lupa penulis ucapkan banyak terima kasih kepada Lembaga Pengelola Dana Pendidikan (LPDP) yang telah membiayai seluruh penelitian ini sehingga tujuan dari penelitian ini dapat tercapai.

Ucapan terima kasih selanjutnya penulis sampaikan kepada rekan dan sahabat selama studi di ITS dan seluruh anggota Laboratorium Elektrokimia dan Korosi Jurusan Teknik Kimia ITS atas segala dukungan dan kebersamaannya. Ucapan khusus kepada saudara Aditya Manggala Gita dan Reymond yang telah membantu dalam pengambilan data penelitian.

Dan yang paling spesial, penulis ucapkan terima kasih yang tiada terkira teruntuk suami tercinta sekaligus partner hidup terbaik Yudanis Taqwin Rohman S.ST, kedua orang tua penulis, Ayahanda (Alm) H. Masjhari dan Ibunda Anik Setiani; ayahanda mertua (Alm) Upoyo Wahyudi dan Ibunda mertua Anisatun Napiah, atas segala doa, cinta, dorongan, dan kesabarannya selama ini.

Penulis menyadari bahwa pembuatan laporan tesis ini masih jauh dari sempurna, dengan segala kerendahan hati kami mengharapkan saran dan kritik untuk perbaikan laporan ini.

Surabaya, Agustus 2016

Penulis

# **DEPOSISI ELEKTROFORESIS UNTUK MEMBUAT LAPISAN KOMPOSIT *HYDROXYAPATITE* PADA KAWAT *ORTHODENTIC***

**Nama** : Nur Shiyama Purnama Sari  
**NRP** : 2314 201 019  
**Dosen Pembimbing** : Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M. Eng

## **ABSTRAK**

Dalam penelitian ini dilakukan study pengaruh penambahan *gelatine* pada lapisan komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang di-*coating* pada kawat *orthodentic* dengan menggunakan metode deposisi elektroforesis. Metode ini digunakan dengan cara menghubungkan sel elektrolisis dengan *power supply* pada tegangan 200 V dengan variasi waktu 2, 4, 6, dan 8 menit. Untuk komposit, konsentrasi HA dan gelatin divariasikan sedangkan konsentrasi SiO<sub>2</sub> dibuat tetap. Konsentrasi HA divariasikan mulai dari 0.5, 1, 1.5, 2, dan 2.5 sedangkan untuk gelatin 0.25, 0.5, 0.75, dan 1. Elektroda karbon berbentuk silinder dipasang sebagai anoda dan kawat *orthodentic* sebagai katoda yang diletakkan ditengah-tengah elektroda karbon. Sampel yang telah terlapisi oleh komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin selanjutnya dipanaskan pada suhu 80 °C selama 24 jam. Uji SEM menunjukkan bahwa adanya gelatin mampu meningkatkan sifat fisik dari komposit HA-SiO<sub>2</sub>. Sedangkan dari uji kualitatif dengan bantuan selotip menunjukkan bahwa adanya gelatin mampu meningkatkan daya lekat coating. Tingginya daya rekat coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> pada permukaan kawat mampu meningkatkan ketahanan korosi. Hasil EDAX dan FTIR menunjukkan bahwa gelatin mampu mengikat komposit HA-SiO<sub>2</sub> pada permukaan kawat *orthodentic* dengan ditemukannya unsur-unsur dan gugus fungsi dari komposit HA-SiO<sub>2</sub>.

Kata kunci: *Hydroxyapatite*, *silicon dioxide*, *gelatine*, deposisi elektroforesis

# **ELECTROPHORESIS DEPOSITION TO MAKE HYDROXYAPATITE COMPOSITE COATING OF THE ORTHODONTIC WIRE**

**Name** : Nur Shiyama Purnama Sari  
**NRP** : 2314 201 019  
**Supervisor** : Prof. Dr. Ir. Heru Setyawan, M. Eng

## **ABSTRACT**

In this research conducted study the effect of the addition of gelatine in the composite layer in the HA-SiO<sub>2</sub> and gelatin coating on the orthodontic wire using electrophoretic deposition. This method is used by connecting the electrolysis cell with a power supply at a voltage of 200 V with a time variation of 2, 4, 6, and 8 minutes. For the composites, the concentration of HA and gelatin varied while the concentration of SiO<sub>2</sub> is made permanent. The concentration of HA varied from 0.5, 1, 1.5, 2, and 2.5 while for gelatin 0.25, 0.5, 0.75, and 1. The cylindrical carbon electrodes fitted as an anode and a cathode orthodontic wire that is placed in the midst of a carbon electrode. Samples were coated by a composite HA-SiO<sub>2</sub> and gelatin further heated at a temperature of 80 ° C for 24 hours. SEM test shows that the gelatin can improve the physical properties of composite HA-SiO<sub>2</sub>. While the qualitative test with the help of masking tape showed that the gelatin can improve adhesion coating EDAX and FTIR results showed that the gelatin is able to bind HA-SiO<sub>2</sub> composite on the surface of the wire orthodontic with the discovery of the elements and functional groups of HA-SiO<sub>2</sub> composite.

Keywords: Hydroxyapatite, silicon dioxide, gelatine, electrophoretic deposition

## DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	
LEMBAR PENGESAHAN.....	ii
KATA PENGANTAR .....	iii
ABSTRAK .....	v
ABSTRACT .....	vi
DAFTAR ISI .....	vii
DAFTAR GAMBAR .....	ix
DAFTAR TABEL.....	xi
<b>BAB 1     PENDAHULUAN</b>	
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Perumusan Masalah .....	2
1.3 Tujuan Penelitian .....	2
1.4 Manfaat Penelitian .....	2
<b>BAB 2     TINJAUAN PUSTAKA</b>	
2.1 <i>Hydroxyapatite</i> .....	3
2.2 <i>Silicon dioxide</i> (SiO <sub>2</sub> ). .....	5
2.3 <i>Gelatine</i> .....	5
2.4 Material komposit untuk <i>coating</i> .....	6
2.5 Deposisi Elektroforesis.....	7
2.6 Pengukuran korosi dengan metode elektrokimia.....	10
2.6.1 Polarisasi Linier .....	10
2.6.2 <i>Electrochemical Impedance Spectroscopy</i> (EIS).....	11
<b>BAB 3     METODOLOGI PENELITIAN</b>	
3.1 Bahan.....	13
3.2 Sintesis serbuk <i>hydroxyapatite</i> .....	13
3.3 Pembuatan hydrosol silika dari <i>waterglass</i> .....	14
3.4 Pembentukan komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan gelatin.....	15
3.5 EDP komposit <i>hydroxyapatite</i> .....	15
3.6 Karakterisasi struktur produk.....	16



BAB 4	HASIL DAN PEMBAHASAN	
4.1	Karakterisasi HA untuk coating .....	21
4.2	Karakterisasi hydrosol untuk coating.....	23
4.3	Karakterisasi komposit untuk coating.....	24
4.4	Proses deposisi elektroforesis.....	25
4.5	Pengaruh konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi..	31
BAB 5	KESIMPULAN .....	43
DAFTAR PUSTAKA		
BIODATA PENULIS		

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Hasil uji polarisasi linier .....	10
Gambar 3.1 Rangkaian alat sintesis serbuk <i>hydroxyapatite</i> .....	14
Gambar 3.2 Rangkaian alat pembuatan hydrosol silika dari <i>waterglass</i> .....	15
Gambar 3.3 Rangkaian alat <i>elektroforesis deposisi</i> komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan <i>gelatine</i> .....	16
Gambar 3.4 Pola difraksi sinar x dan Instrumen XRD PANalytical .....	16
Gambar 3.5 Alat <i>zetasizer nano perticle analyser series</i> .....	18
Gambar 3.5 Rangkaian alat uji polarisasi linier dan EIS.....	20
Gambar 4.1 Hasil analisa XRD serbuk HA .....	21
Gambar 4.2 Hasil SEM serbuk HA .....	22
Gambar 4.3 Hasil Hasil Analisa Distribusi Ukuran Serbuk HA .....	22
Gambar 4.4 Hasil Hasil Analisa Distribusi Ukuran Alcosol .....	24
Gambar 4.5 Hasil Hasil Analisa Distribusi Ukuran Komposit.....	24
Gambar 4.6 Gambar mekanisme EDP komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan gelatin.....	25
Gambar 4.7 Uji SEM coating komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan gelatin .....	26
Gambar 4.8 Gambar kawat <i>ortho</i> yang <i>dicoating</i> komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan gelatin .....	27
Gambar 4.9 Uji kualitatif kekuatan <i>coating</i> .....	27
Gambar 4.10 Uji polarisasi linier pengaruh daya rekat terhadap ketahanan korosi .....	28
Gambar 4.11 Uji EDAX <i>coating</i> komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan gelatin.....	29
Gambar 4.12 Hasil uji FTIR <i>coating</i> kawat .....	31
Gambar 4.13 Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi.....	32
Gambar 4.14 Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi.....	33
Gambar 4.15 Gambar sirkuit untuk uji EIS <i>coating</i> kawat .....	33
Gambar 4.16 Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi.....	34
Gambar 4.17 Hasil uji polarisasi linier pengaruh lama waktu EDP terhadap ketahanan korosi .....	35
Gambar 4.18 Hasil uji polarisasi linier pengaruh lama waktu EDP terhadap besarnya laju korosi .....	36

Gambar 4.19 Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh lama waktu EDP terhadap ketahanan korosi .....	37
Gambar 4.20 Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi <i>hydrosol</i> terhadap ketahanan korosi .....	38
Gambar 4.21 Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi <i>hydrosol</i> terhadap besarnya laju korosi .....	38
Gambar 4.22 Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh penambahan konsentrasi <i>hydrosol</i> terhadap ketahanan korosi .....	39
Gambar 4.23 Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi <i>hydroxyapatite</i> terhadap ketahanan korosi .....	40
Gambar 4.24 Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi <i>hydroxyapatite</i> terhadap besarnya laju korosi .....	40
Gambar 4.25 Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh penambahan konsentrasi <i>hydroxyapatite</i> terhadap ketahanan korosi .....	42

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Karakteristik teknik elektrodeposisi .....	8
Tabel 4.1 Komposisi kawat orthodontic yang dicoating komposit HA-SiO <sub>2</sub> dan gelatin .....	30
Tabel 4.2 Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi.....	32
Tabel 4.3 Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh lama proses EDP terhadap ketahanan korosi.....	35
Tabel 4.4 Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi hydrosol terhadap ketahanan korosi.....	38
Tabel 4.5 Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi hydroxyapatite terhadap ketahanan korosi.....	40

(Halaman ini sengaja dikosongkan)

## BAB 1

### PENDAHULUAN

#### 1.1. Latar Belakang

*Hydroxyapatite* (HA) merupakan salah satu biokeramik kalsium ortofosfat yang bersifat unik dan mempunyai kemiripan kimia dengan komponen bahan tulang dan gigi manusia. Kecenderungan HA yang bersifat biokompatibel dan bioaktivitas yang baik membuat penelitian mengenai HA semakin berkembang. Salah satunya yaitu telah berhasil dibuatnya komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang mempunyai struktur yang lebih kuat. (Zhitomirsky dkk, 2006). Penambahan SiO<sub>2</sub> pada HA juga menjadikan komposit HA-SiO<sub>2</sub> memiliki kemampuan bioaktivitas dan osteokonduktivitas yang cukup tinggi. (Gibson dkk, 1999).

Dalam dunia medis, HA telah diaplikasikan dalam berbagai hal salah satunya digunakan untuk coating. Pelapisan (*coating*) senyawa bioaktif seperti HA-SiO<sub>2</sub> sangat signifikan untuk memodifikasi permukaan logam implan pada tulang. *Coating* HA-SiO<sub>2</sub> dapat menurunkan pelepasan bahan kimia berbahaya implan inti dan dapat menjadi substrat pelindung dari pengaruh buruk lingkungan.

Nur dan Setyawan (2014), telah berhasil meng-*coating* komposit HA-SiO<sub>2</sub> pada kawat *orthodontic* dengan menggunakan metode deposisi elektroforesis. Dari hasil uji karakteristik yang telah dilakukan terlihat bahwa komposit HA-SiO<sub>2</sub> belum menempel secara merata pada kawat *orthodontic*. Hal ini diduga akibat dari permukaan kawat *orthodontic* yang halus sehingga komposit HA-SiO<sub>2</sub> sulit untuk menempel. Selanjutnya di tahun 2015 Heny dan Mutia telah mencoba menyempurnakan penelitian sebelumnya dengan melakukan treatment awal kawat melalui proses anodisasi. Pada proses anodisasi permukaan kawat akan teroksidasi yang lama kelamaan akan membentuk pori dan membuat permukaan kawat tidak rata. Dari penelitian yang telah dilakukan didapatkan bahwa komposit HA-SiO<sub>2</sub>

telah berhasil menempel namun belum memberikan hasil yang signifikan. Untuk itu diperlukan upaya untuk meningkatkan daya rekat komposit HA-SiO<sub>2</sub>

*Gelatine* merupakan suatu ikatan polipeptida yang dihasilkan dari hidrolisa kolagen tulang dan kulit. *Gelatine* mempunyai kemampuan untuk memproduksi gel jernih yang bersifat *thermoreversibel* sehingga mampu di aplikasikan di berbagai bidang serta mempunyai daya adhesiv yang sangat kuat. *Gelatine* memiliki sifat unik yaitu bila dilakukan pemanasan di bawah suhu 35 °C yaitu pada suhu tubuh manusia maka akan membentuk gel. Sifatnya yang lentur dan kemampuan korositasnya yang rendah akan dapat menjadi perpaduan yang cukup menarik jika digabungkan dengan komposit HA-SiO<sub>2</sub>

## **1.2. Perumusan Masalah**

Dari uraian di atas, maka penelitian kali ini masalah difokuskan pada daya rekat komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang kurang kuat dan rapuh, dengan adanya *gelatine* kemungkinan mampu meningkatkan daya rekat, sifat fisik, dan ketahanan korosi dari komposit *hydroxyapatite* yang ter-*coating* pada kawat *orthodontic*.

## **1.3. Tujuan Penelitian**

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui dan mempelajari pengaruh penambahan *gelatine* terhadap daya rekat, sifat fisik, dan ketahanan korosi dari komposit *hydroxyapatite* yang ter-*coating* pada kawat *orthodontic*.

## **1.4. Manfaat Penelitian**

Adapun manfaat yang ingin dicapai dari penelitian ini adalah mendapatkan hasil *coating* komposit *hydroxyapatite* yang mempunyai daya rekat tinggi, mempunyai sifat fisik yang baik, dan ketahanan korosi yang baik sehingga dapat di aplikasikan dalam dunia biomedis.

## BAB 2

### KAJIAN PUSTAKA

#### *2.1 Hydroxyapatite*

*Hydroxyapatite* (HA) merupakan jenis *bioceramik calcium phosphate* dengan rumus kimia  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{OH}_2$ , berupa serbuk berwarna putih, dan sering diaplikasikan dalam bidang medis. Pada umumnya struktur kisi kristalnya adalah heksagonal. HA terdiri dari (% berat ideal) Ca 39.9%, P 18.5%, H 0.2%, O 41.41% dengan rasio Ca/P sebesar 1.64 (Kohn dan David, 2004). Alasan digunakannya HA sebagai bioceramik dalam bidang medis yaitu kemiripannya dengan mineral pada tulang dan gigi, bersifat tidak beracun, biokompatibel, memiliki konduktifitas listrik dan termal rendah.

HA dapat digunakan pada berbagai aplikasi biomedis, meliputi matriks untuk kontrol pelepasan obat (Kamitakahara dkk., 2013), *scaffold* untuk pembentukan tulang baru (Tripathi dkk., 2012), serta *filler* dan *coating* untuk perbaikan kerusakan tulang (Bohner dkk., 2000).

Ada beberapa metode yang digunakan untuk mensintesis HA diantaranya chemical precipitation (Martin dkk, 2008), hydrothermal (Xin dkk, 2010; Tomozawa dan Hiromoto, 2011), emulsion (Banerjee dkk, 2007), sol-gel (Fathi dan Hanafi, 2007), mechanochemical (Nasiri-Tabrizi dkk, 2009), dan metode elektrokimia (Nur dan Setyawan, 2016).

Dalam penelitian ini proses sintesis yang dipilih yaitu dengan metode elektrokimia. Proses ini dipilih karena memiliki reaksi kimia yang terjadi relatif sederhana serta ukuran dan homogenitas ukuran partikel yang didapat cenderung cukup baik. Merujuk dari hasil penelitian Nur dan Setyawan (2016), mekanisme sintesis HA dengan metode elektrokimia diawali dengan terjadinya reaksi reduksi air di katoda

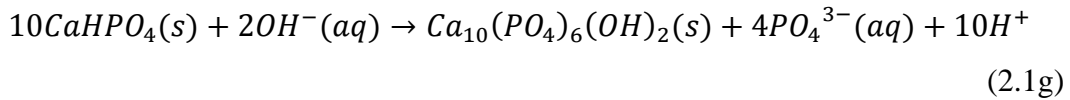
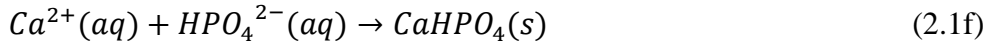




Ion  $\text{OH}^-$  hasil dari reduksi air menginduksi lepasnya ion  $\text{Ca}^{2+}$  dari EDTA dan juga menyebabkan disosiasi  $\text{H}_3\text{PO}_4$



Pelepasan ion  $\text{Ca}^{2+}$  dan disosiasi *phosphoric acid* menyebabkan terbentuknya *calcium phosphate*. Pembentukan HA diasumsikan terjadi melalui reaksi intermediate dari *brushite* ( $\text{CaHPO}_4$ ).



Selama beberapa tahun, aplikasi klinik biokeramik berbasis kalsium fosfat telah dibatasi untuk bagian-bagian bantalan tanpa beban tulang-tulang karena sifat mekaniknya yang rendah. Salah satu inovasi utama dalam 20 tahun terakhir adalah meng-*coating* kalsium fosfat pada protesis yang secara mekanikal kuat, seperti logam. Sebuah peralatan dengan badan logam dengan sifat mekanik kuat seringkali dibutuhkan. Tetapi logam tidak dapat berikatan dengan sifat mekanik yang stabil antara implan dan jaringan tulang. Salah satu cara untuk meningkatkan kontak pada *interface* adalah dengan meng-*coating* logam dengan biokeramik kalsium fosfat yang secara umum menunjukkan kemampuan mengikat logam dan tulang.

*Coating* pada implan mengkombinasikan biokompabilitas dan bioaktivitas permukaan kalsium fosfat dengan kekuatan inti substrat. Selain itu, *coating* biokeramik juga menurunkan pelepasan potensial bahan kimia berbahaya implan inti dan permukaan substrat pelindung dari serangan lingkungan. Dalam kasus implan berpori, *coating* kalsium fosfat meningkatkan pertumbuhan tulang dalam pori. Hasil uji klinik menunjukkan bahwa implan yang dicoating kalsium fosfat mempunyai waktu penggunaan lebih lama dibandingkan tanpa dicoating. *Coating* HA sebagai sistem implan pangkal paha dan implan gigi telah banyak dilakukan.

Sejumlah faktor yang mempengaruhi sifat *coating* kalsium fosfat adalah ketebalan *coating* (yang juga mempengaruhi adhesi dan fixasi – dengan nilai optimum saat ini adalah 50 – 100  $\mu\text{m}$ ), kristalinitas, kemurnian fase, kemurnian kimia, porositas, dan adhesi.

## 2.2 Silicon Dioxide ( $\text{SiO}_2$ )

Sering dikenal sebagai silika, merupakan senyawa logam oksida yang banyak terdapat di alam, namun keberadaannya di alam tidak dalam kondisi bebas melainkan terikat dengan senyawa lain baik secara fisik maupun kimia. Campuran kimia "silicon dioxide" mempunyai rumus kimia  $\text{SiO}_2$ . Silika di alam dijumpai dengan bermacam-macam bentuk, diantaranya quartz dan opal.

Silika menunjukkan beberapa sifat sebagai material ideal untuk *grafting* dan *scafflod*. Partikel silika bioaktif ukuran nano mempunyai luas permukaan besar yang dapat membentuk sebuah *interface* yang lebih rapi dengan matriks polimer dalam komposit. Partikel keramik bioglass nano merupakan salah satu isi utama tidak hanya menyediakan *scaffold* polimer dengan kapasitas biomineralisasi tetapi juga meningkatkan kekakuan material polimer tanpa menurunkan kekuatan mekanik (Kothapalli dkk., 2005). Turunan silika telah digunakan sebagai material pengganti tulang dengan tingkat keberhasilan yang baik (Arcos dkk., 2010). Selain itu silika juga telah dikenal sebagai bio-mimetic untuk melapisi permukaan logam (Galindo., 2009). Biokompabilitas yang baik membuat silika cocok digunakan dalam sejumlah perawatan pribadi, farmasi, dan aplikasi peralatan medis.

## 2.3 Gelatine

*Gelatine* merupakan zat kimia yang mempunyai sifat tembus cahaya, tidak berwarna atau kekuningan, berasa tawar dan tidak berbau, yang dapat diperoleh dengan hidrolisis kolagen yang diekstrak dari kulit hewan, tulang rawan, ligamen, dan lain-lain. Saat ini, pemanfaatan gealtin semakin meluas, baik untuk produk pangan maupun non pangan. Penggunaannya dapat sebagai *gelling agent* (bila didinginkan dibawah suhu  $35^\circ\text{C}$ ), *stabilizer*, *fining agent*, *whipping agent*,

*biological substrate*, pembuatan kapsul dalam bidang farmasi, *binder* (pengikat), *adhesive* (perekat), *coating* atau *separating agent*, *surface sizing*, dan lain-lain.

Kelarutan *gelatine* tergantung pada metode pembuatannya. Umumnya *gelatine* dapat dipecah dengan asam pekat. *Gelatine* juga larut dalam kebanyakan *solvent* polar. Konsentrasi *gelatine* dan temperaturnya memiliki pengaruh yang sangat penting terhadap viskositasnya, semakin tinggi konsentrasi dan temperaturnya viskositasnya juga semakin tinggi.

*Gelatine* mengandung 98 – 99 % protein, terdiri dari jumlah yang besar (300 – 4000 asam amino) dari *glysine*, *proline* dan residu *hydroxyproline*. Perkiraan komposisi asam amino dalam *gelatine* adalah *glycine* (21 %), *proline* (12 %), *hydroxyproline* (12 %), *glutamic acid* (10 %), *alanine* (9 %), *arginine* (8 %), *aspartic acid* (6 %), *lysine* (4 %), *serine* (4 %), *lencine* (3 %), *valine* (2 %), *phenylalanine* (2 %), *theorine* (2 %), *isoleusine* (1 %), *hydroxylysine* (1 %), *methionine* dan *histidine* ( < 1 %), dan *tyrosine* ( < 0.5 %). *Gelatine* dapat cair ketika dipanaskan, dan akan menjadi keras ketika didinginkan. Bila direaksikan dengan air akan membentuk gel koloid semi solid.

Dalam bentuk powder solid, *gelatine* berwarna putih kekuningan dan mempunyai titik didih dengan temperatur dekomposisi > 100°C (212°F), pH=6, densitas 0,68 – 1,2 g/cc.

## **2.4 Material Komposit untuk coating**

Coating pada implan berfungsi untuk menurunkan pelepasan potensial bahan kimia berbahaya implan inti dan permukaan substrat pelindung dari serangan lingkungan. Material bioimplan yang dipasang didalam tubuh akan menerima beberapa respon dalam 4 kategori, yaitu:

1. **Toxic Materials** - jaringan yang disekelilingnya akan mati
2. **Bioinert materials** – material tidak beracun namun tidak bisa berinteraksi dengan jaringan tubuh.
3. **Bioactive materials** – material tidak beracun dan dapat berinteraksi dengan tubuh, akan terbentuk ikatan interfacial antara jaringan dengan material.

Material ini dapat membentuk ikatan kimia dengan jaringan disekitarnya, sehingga pertumbuhan jaringan akan terstimulus.

4. **Bioreabsorbable materials** – material tidak beracun dan terlarut. Jaringan disekelilingnya akan menggantikan material terlarut yang tidak beracun dan masuk ke dalam sistem metabolisme tubuh.

Dari ke empat kategori di atas solusi terbaik untuk mendapatkan material bioimplan yang memiliki properti mekanik dan biologis yang baik dengan menggunakan material bioactive. Dalam proses pelapisan (coating) implan, bahan biopolimer dan biokeramik memiliki properti biologi yang baik namun kurang kuat untuk bekerja dalam siklus dengan kondisi yang berat. Hal ini dikarenakan secara terpisah tiap material memiliki kelemahan salah satunya memiliki kekuatan mekanik yang rendah sehingga akan cenderung rapuh. Untuk meningkatkan kekuatan coating digunakan material komposit. Material komposit merupakan material yang terbentuk dari kombinasi antara dua atau lebih material pembentuknya melalui pencampuran yang tidak homogen, dimana sifat mekanik dari masing-masing material pembentuknya berbeda. Selain itu dengan menggunakan material komposit mampu mengontrol degradasi dan topografi material baik pada partikel berukuran nano maupun mikro.

## 2.5 Deposisi Elektroforesis

Ada beberapa metode yang digunakan untuk meng-*coating* komposit *hydroxyapatite* pada logam, namun metode *electrophoresis deposition* (EPD) merupakan metode yang paling menarik karena mempunyai keunggulan antara lain fleksibilitas yang tinggi sehingga dapat menggunakan berbagai material, efektivitas biaya, kesederhanaan peralatan, waktu pembentukan singkat, sedikit pembatasan untuk berbagai bentuk substrat, kemudahan kontrol ketebalan dan morfologi film yang didepositkan melalui penyesuaian sederhana dari waktu deposisi dan potensial yang diterapkan.

Secara khusus, EPD menawarkan kemudahan control ketebalan dan morfologi film yang didepositkan melalui penyesuaian sederhana dari waktu deposisi dan potensial yang diterapkan. Dalam EPD, partikel serbuk bermuatan, terdispersi atau tersuspensi dalam media cair dapat tertarik dan terdeposisi ke

substrat konduktif muatan berlawanan dengan penerapan medan listrik DC. Istilah 'elektrodeposisi' sering digunakan agak ambigu mengacu ke electroplating atau EPD (Besra dan Liu, 2007). Tabel 2.1 menyajikan perbedaan antara dua proses.

Tabel 2.1 Karakteristik Teknik Elektrodeposisi

Sifat	Elektroplating	Elektroforesis Deposisi
Spesies bergerak	Ion	Partikel padat
Transfer muatan pada deposisi	Reduksi ion	Tidak ada
Konduktasi yang dibutuhkan pada medium liquid	Tinggi	Rendah
Liquid yang disarankan	Air	Organik

Perbedaan dasar antara EPD dan *electrolytic deposition process* (ELD) adalah pembentuk didasarkan pada suspensi partikel dalam sebuah solven dimana kemudian berbasis pada larutan garam, yaitu spesies ionik. Ada 2 tipe EPD tergantung pada elektroda mana deposisi terjadi. Ketika partikel bermuatan positif, deposisi terjadi di katoda dan proses disebut EPD katodik. Deposisi partikel bermuatan negatif terjadi pada elektroda positif (anoda) dan disebut EPD anodik. Dengan modifikasi permukaan partikel yang tepat, memungkinkan untuk menggabung kedua tipe deposisi.

Daya dorong utama untuk EPD adalah muatan pada partikel dan mobilitas elektrophoresis partikel dalam solven di bawah pengaruh listrik yang diaplikasikan. Teknik EPD sukses digunakan untuk lapisan tipis silika, membran zeolit nanosize, *coating* komposit *hydroxyapatite* pada logam untuk aplikasi biomedis, material *luminescent*, film superkonduktif, elektroda difusi gas, dan sensor, komposit multi layer, komposit matriks gelas dan keramik dengan infiltrasi partikel keramik pada fibra, nanorod oksida, film *carbon nanotube*, keramik terlapis, superkonduktor, material piezoelektrik, dll. Kelemahan metode

EPD dibanding proses koloid lain (contohnya *dip* dan *slurry coating*) adalah tidak dapat menggunakan air sebagai medium karena aplikasi sebuah potensial pada air menyebabkan munculnya gas hidrogen dan oksigen pada elektroda yang dapat mempengaruhi kualitas deposit yang terbentuk.

Selama proses EPD berlangsung terdapat tiga gaya yang bekerja pada sistem ini yaitu gaya elektrostatis, gerak brown, dan gaya osmotik yang akan membentuk struktur double layer. Fenomena elektroforesis yang terjadi didasarkan pada teori DLVO (Dejaguin-Landau-Verwey-Overbeek) yang mengamati tentang pergerakan partikel bermuatan positif. Dalam kondisi tidak ada partikel luar yang bekerja, hanya gaya DLVO (FT) yang bekerja. Adanya medan listrik DC eksternal yang digunakan (FE), partikel pada elektroda yang dideposisi dengan partikel kedua bergerak mendekat. Penggunaan medan listrik pada sistem memberikan gaya modifikasi (FM) pada partikel:

$$F_M = F_T + F_E$$

Apabila medan memberikan gaya yang lebih besar daripada gaya repulsive, maka kedua partikel akan terkoagulasi pada elektroda. Apabila partikel bermuatan positif bergerak ke katoda dalam sel EDP, sistem lyosphere (counter-ion yang mengelilingi partikel membentuk difusi double layer) akan dibiaskan oleh dinamika fluida dan medan listrik, kemudian akan terjadi penipisan pada partikel.

. kation dalam liquid juga berpindah bersama partikel, dan counter-ion akan bereaksi bersama mereka. Sebagai hasil dari reaksi kimia ini, double layer disekitar ekor dilute partikel, dan partikel yang datang (yang juga memiliki double layer) dapat mendekati gaya Van der Waals dan memungkinkan koagulasi/deposisi pada elektroda. Suspensi yang terdispersi dengan baik dibutuhkan untuk menghindari flokulasi ataupun koagulasi partikel dalam suspensi yang akan berakibat pada ketidakseragaman ketebalan film.

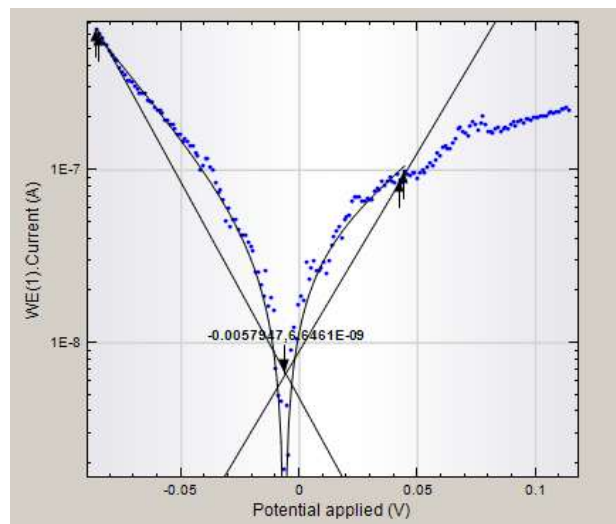
Mekanisme EPD meliputi partikel bermuatan dalam sebuah suspensi didepositkan pada sebuah elektroda pada pengaruh elektrik yang diaplikasikan. Dua kelompok parameter menentukan karakteristik proses ini, yaitu (1) yang berhubungan dengan suspensi dan (2) yang berhubungan dengan proses termasuk

parameter fisik seperti sifat elektrik alamiah elektroda, kondisi elektrik (potensial, hubungan intensitas, waktu deposisi, dll). Untuk EPD partikel, bagian arus seharusnya dibawa tidak hanya oleh muatan partikel tetapi juga oleh ion bebas yang terdapat dalam suspensi. Parameter yang berhubungan dengan suspensi yang dapat mempengaruhi EPD antara lain : ukuran partikel, konstanta dielektrik larutan, konduktivitas suspensi, viskositas suspensi, zeta potensial, dan stabilitas suspensi. Parameter yang berhubungan dengan proses antara lain : waktu deposisi, potensial aplikasi, konsentrasi solid pada suspensi, dan konduktivitas substrat elektroda.

## 2.6 Pengukuran Korosi dengan Teknik Elektrokimia

### 2.6.1 Polarisasi Linier

Pengujian korosi dilakukan dengan metode polarisasi linier. Prinsip metode ini adalah jika anoda dan katoda yang ada dalam suatu elektrolit terhubung singkat, maka reaksi-reaksi anodik dan katodik akan berlangsung dan sistem sel elektrokimia akan keluar dari kesetimbangan sehingga potensial kedua elektroda akan bergeser dari potensial termodinamikanya. Peristiwa bergesernya potensial elektroda dari potensial kesetimbangannya disebut sebagai polarisasi.



Gambar. 2.1. Hasil uji polarisasi linier

Pada kurva polarisasi menunjukkan hubungan antara log I lawan E seperti yang tertera pada gambar 2.1. Dengan melihat kurva polarisasi, dapat ditentukan nilai  $I_{corr}$  (arus korosi) dan juga  $E_{corr}$  (tegangan korosi). Nilai  $I_{corr}$  tidak dapat dihitung secara langsung, perlu dilakukan estimasi dari data log I lawan E untuk mengetahuinya. Estimasi dilakukan dengan mengekstrapolasi bagian linier dari plot log I lawan potensial yang bertemu pada satu titik pertemuan. Titik pertemuan arus anodik dan katodik ini yang disebut  $I_{corr}$ . Namun, pada prakteknya dalam sistem korosi tidak memberikan daerah yang cukup linier untuk melakukan ekstrapolasi secara akurat. Sehingga, pada saat ini, uji korosi yang dapat memberikan hasil yang lebih akurat adalah dengan melakukan numerical fit dengan menggunakan Butler-Volmer Equation. Adapun persamaan yang digunakan adalah sebagai berikut:

$$CR = I_{corr} \times K \times EW/dA$$

Dimana:

- CR = corrosion rate (laju korosi) dalam mm/tahun
- $I_{corr}$  = Arus korosi dalam Amphere
- K = Konstanta yang mendefinisikan satuan rate korosi
- EW = Berat ekivalen dalam gram/ekivalen
- d = densitas dalam  $\text{gr/cm}^3$
- A = luas sample dalam  $\text{cm}^2$

### **2.6.2 Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS)**

EIS merupakan respon dari sebuah sistem elektrokimia (sel) terhadap suatu potensial yang diberikan. Impedans ini sangat tergantung pada frekuensi potensial yang diberikan. Respon ini sangat tidak linear. Respon inilah yang dianalisa untuk mengungkapkan fenomena proses kimia yang terjadi. Keuntungan penggunaan EIS adalah dapat digunakan untuk material dengan resistansi tinggi seperti logam terkoating, dapat menyediakan data sebagai fungsi waktu, non-



destruktif, dan tersedia data kuantitatif. Kekurangannya adalah dibutuhkan analisa data yang cukup kompleks untuk kuantifikasi data.

*Electrochemical Impedance Spectroscopy* biasanya diukur dengan memberikan potensial AC ke dalam sel elektrokimia dan mengukur arus yang melewati sel. Impedansi itu sendiri terdiri dari bagian nyata dan imajiner. Jika impedansi ini diplot, bagian real pada sumbu X dan bagian imajiner pada sumbu Y maka diperoleh *Nyquist Plot*. *Nyquist* ini memiliki kekurangan, yaitu tidak bisa mengetahui pada frekuensi berapa data tersebut ditampilkan. Tidak seperti *nyquist plot*, *Bode Plot* secara eksplisit memberikan informasi tentang frekuensi.

Karakterisasi sistem elektrokimia dengan EIS membutuhkan interpretasi data dengan bantuan model yang sesuai. Model ini dapat dibagi menjadi dua kategori, yaitu model sirkuit ekivalen dan model proses. Model didasarkan pada data eksperimen untuk mengestimasi parameter yang dapat mendeskripsikan data eksperimen secara tepat dan dapat digunakan untuk memprediksi bagaimana sistem terjadi.

## BAB 3

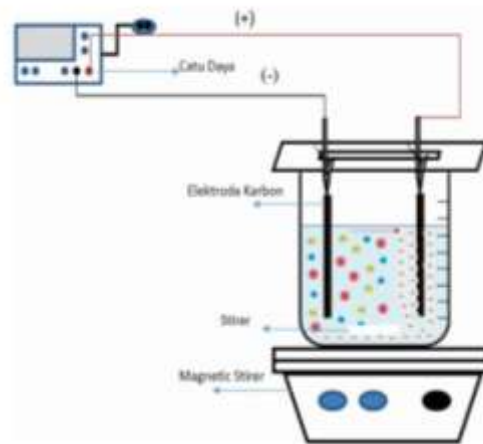
### METODE PENELITIAN

#### 3.1 Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian adalah  $\text{Na}_2\text{H}_2\text{EDTA} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  (Merck),  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  (Merck),  $\text{CaCl}_2$  (Merck), Sodium Silikat (PT. PQ Silicer Indonesia), resin kation, KOH (Merck), Asam Asetat Glacial (Merck), Isopropanol Teknis, *gelatine*, *formic acid* (Merck) sebagai pelarut *gelatine*, dan kawat *orthodontic*. Seluruh bahan yang digunakan tidak melalui pemurnian lebih lanjut. Larutan elektrolit yang digunakan untuk uji karakterisasi adalah larutan Ringer sebagai larutan SBF (*simulated body fluid*) yang terdiri dari NaCl 8.6 g/L, KCl 0.3 g/L dan  $\text{CaCl}_2$  0.33 g/L.

#### 3.2 Sintesis serbuk *hydroxyapatite*

Sintesis *hydroxyapatite* (HA) dilakukan dengan menggunakan metode elektrokimia. Susunan alat pada percobaan untuk sintesis HA ditunjukkan pada gambar 3.1 yang terdiri dari satu set sel elektrokimia, 2 buah elektroda carbon, dan catu daya DC. Larutan elektrolit terdiri  $\text{Na}_2\text{H}_2\text{EDTA} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , dan  $\text{CaCl}_2$  dengan konsentrasi  $\text{EDTA}/\text{PO}_4^{3-}/\text{Ca}^{2+}$  sebesar 0.25/0.15/0.25 M. Sel elektrokimia dihubungkan dengan catu daya DC (GPD X303S, GW Instek) yang berfungsi untuk memberi beda potensial antara kedua elektroda. Potensial yang digunakan sebesar 6 V selama 6 jam. Endapan kemudian disaring, dicuci dan dikeringkan di dalam *oven* pada suhu  $100^\circ\text{C}$  selama 24 jam.

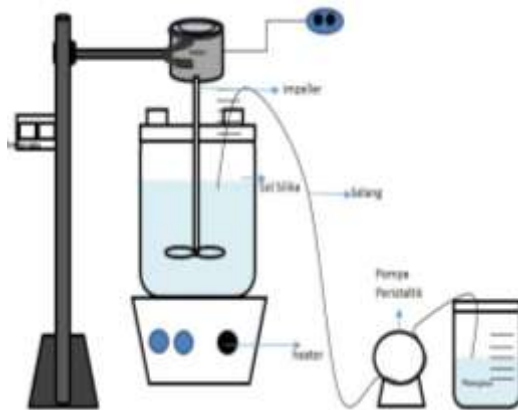


Gambar. 3.1. Rangkaian Alat Sintesis Serbuk *Hydroxyapatite*

### 3.3 Pembuatan hydrosol silika dari *waterglass*

Adapun langkah pertama yang dilakukan dalam pembuatan hydrosol silika adalah melarutkan 140 gram *waterglass* ke dalam 1000 ml air bertemperatur 60 °C. Larutan *waterglass* yang telah diencerkan didinginkan pada suhu ruangan dan selanjutnya dikontakkan dengan resin kation melalui proses pengadukan selama 30 menit dengan perbandingan volume antara *waterglass* encer : resin kation sebesar 1:1. Ketika dilakukan kontak dengan resin, ion  $\text{Na}^+$  yang terkandung dalam larutan *waterglass* akan ditukar dengan ion  $\text{H}^+$  sehingga terbentuk *silicic acid* pH 2.

Kemudian *silicic acid* dititrasi ke dalam larutan KOH 1 % yang mempunyai pH 13 dengan laju alir 1 ml/menit hingga terbentuk sol silika pada pH 10. Proses titrasi digambarkan pada gambar 3.2. hydrosol silika yang terbentuk selanjutnya dilarutkan ke dalam isopropanol yang telah ditambahkan asam asetat sebelumnya, sehingga menjadi alcosol silika yang mengandung sedikit air. Pembuatan alcosol silika ini bertujuan untuk mengurangi reduksi air selama proses elektrodposisi berlangsung (Alfonz Plško dkk, 2014) dan asam asetat yang ditambahkan berfungsi sebagai stabilizer. Dalam larutan EDP isopropanol dan asam asetat yang digunakan memiliki perbandingan volume 2.5:1.



Gambar 3.2 Rangkaian alat pembuatan hydrosol silika dari *waterglass*

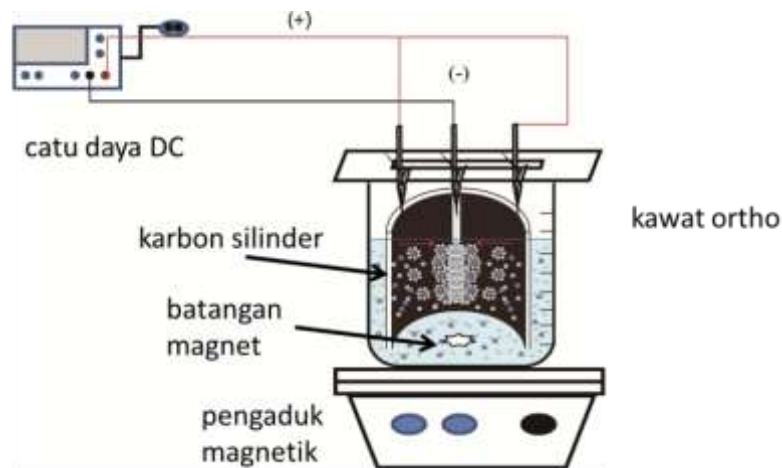
### 3.4 Pembentukan komposit HA-SiO<sub>2</sub>- gelatine

Pembentukan komposit dilakukan dengan mencampurkan HA dan alcosol silika dengan gelatine yang sebelumnya telah di encerkan menggunakan *formic acid*. Dalam larutan EDP konsentrasi HA dan gelatin divariasikan yaitu untuk HA 0.5-2.5 sedangkan untuk gelatin 0.5-1 dengan konsentrasi SiO<sub>2</sub> dibuat tetap

### 3.5 Deposisi elektroforesis komposit HA-SiO<sub>2</sub>- gelatine pada kawat *orthodontic*

Susunan alat pada percobaan untuk pelapisan komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatine pada kawat *orthodontic* ditunjukkan pada gambar 3.3 yang terdiri dari satu sel elektrokimia dan catu daya DC (GPD X303-S, GW Instek). Sebelum proses elektroforesis deposisi komposit *hydroxyapatite* digetarkan dengan gelombang ultrasonik pada ultrasonikator (Ultrasonic cleaner 8890, Cole Palmer) selama 15 menit, sehingga suspensi terdispersi merata. Elektroda karbon berbentuk silinder dipasang sebagai anoda, sedangkan pada katoda dipasang kawat *orthodontic* berdiameter 0,9 mm yang ditempatkan ditengah-tengah elektroda karbon berbentuk silinder. Sel elektrokimia dihubungkan dengan catu daya DC yang berfungsi untuk memberi beda potensial antara kedua elektroda. Potensial yang digunakan sebesar 200 V dengan variasi waktu 2-8 menit. Selanjutnya kawat *orthodontic* yang telah terlapisi komposit

HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatine dikeringkan di dalam oven bersuhu 80 °C selama 24 jam.



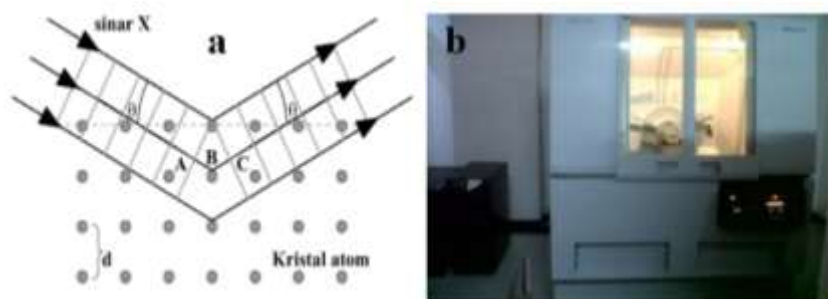
Gambar. 3.3 Rangkaian Alat Deposisi Elektroforesis Komposit HA-SiO<sub>2</sub>-Gelatine

### 3.6 Karakterisasi Struktur Produk

Beberapa pengujian yang telah dilakukan untuk mengetahui karakteristik produk antara lain :

#### 1. XRD (*X-Ray Diffraction*, X'pert Philips)

Difraksi sinar-X atau yang lebih dikenal sebagai XRD, adalah instrumen yang digunakan untuk mengidentifikasi struktur kristal dan fasa hydroxyapatite dengan memanfaatkan radiasi gelombang elektromagnetik sinar-X. Data XRD berupa intensitas dan besar sudut hamburan sinar.



Gambar 3.4 (a) Pola difraksi sinar x (b) Instrumen XRD PANalytical

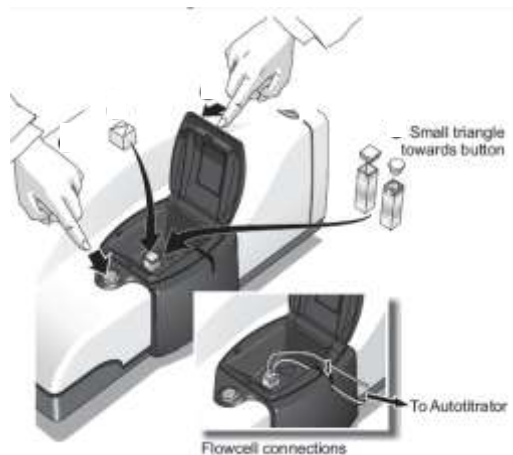
Cara kerja dari mesin XRD ini adalah generator tegangan tinggi pada tabung sinar X akan menghasilkan sinar X yang kemudian ditembakkan ke permukaan sampel yang berbentuk serbuk yang diletakkan di dalam sebuah piringan kecil (sample cell). Sinar yang mengenai permukaan sampel akan mengeksitasi elektron pada kulit terluar sehingga elektron yang hilang akan menempati daerah yang memiliki tingkat energi yang lebih tinggi selama transisi dan terjadilah radiasi sinar X. Sinar X akan dihamburkan dan ditangkap oleh detektor yang kemudian diterjemahkan dalam bentuk kurva intensitas dan sudut. Kondisi refleksi sinar X dirumuskan dalam persamaan Bragg (Mitchell, 2004):

$$n\lambda = 2d \sin\theta \quad (3.1)$$

Pada penelitian ini, pengujian XRD dilakukan dengan pengamatan difraksi sinar X pada sudut  $2\theta = 5^\circ - 90^\circ$  menggunakan mesin XRD X' Pert Pro PANalytical Philips.

## **2. Karakterisasi distribusi rata-rata ukuran partikel dan nilai zeta potensial menggunakan analisa *Particle Size Analyzer* (PSA).**

Untuk mengetahui ukuran partikel dan nilai zeta potensial dari suspensi komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin dalam larutan EDP dilakukan uji PSA dengan menggunakan Zetasizer Nano Particle Analyser Series. Dalam analisa PSA sampel harus dalam bentuk liquid yang ditempatkan di dalam kuvet kaca dan selanjutnya ditembakkan cahaya dengan intensitas tertentu. Cahaya yang ditembakkan selanjutnya diserap kembali dan diterjemahkan dengan Zetasizer Nano Software sehingga akan didapatkan nilai distribusi partikel dan zeta potensialnya.



Gambar 3.5 Alat Zetasizer Nano Particle Analyser Series

### 3. Karakterisasi morfologi dan komposisi produk dengan SEM & EDAX

Untuk pengujian morfologi HA dan coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin menggunakan SEM (*Scanning Electron Microscope*) dan komposisi unsur coating komposit dengan menggunakan EDAX (*Energy Dispersive X-Ray Analysis*).

Alat ini bekerja dengan memfokuskan sinar elektron berenergi tinggi untuk menghasilkan difraksi sinar pada permukaan sampel. Difraksi ini menghasilkan sinyal yang berasal dari interaksi elektron dengan sampel sehingga dapat terlihat morfologi eksternalnya (tekstur), komposisi kimia, struktur kristal serta orientasi bahan penyusunnya. Sebelum dianalisa, pertama sampel diletakkan pada pin SEM yang telah ditemplei *tape*. *Tape* yang digunakan dapat berupa *copper tape* ataupun *carbon tape*. *Carbon tape* digunakan untuk analisa SEM dan *copper tape* digunakan untuk analisa EDAX. Dilakukan *coating* dengan PdAu (Paladium Emas) untuk analisa EDAX dan *carbon* untuk analisa SEM.

### 4. Karakterisasi Gugus Fungsi dengan *Fourier Transform Infra Red* (FTIR, Thermo Scientific Nicoletis 10)

Spektrofotometri FTIR (*Transformasi Fourier Infra Red*) menggunakan Shimadzu adalah alat yang digunakan untuk mengetahui gugus fungsi yang terkandung di dalam komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin.

Pada dasarnya spektrofotometer FTIR sama dengan spektrofotometer IR disperse, bedanya adalah pengembangan pada sistem optiknya sebelum berkas sinar infra merah melewati sampel. Hal ini didasarkan pada atom-atom dalam suatu molekul tidak diam melainkan bervibrasi. Bila radiasi infra merah yang kisaran energinya sesuai dengan frekuensi vibrasi rintangan (*stretching*) dan vibrasi bengkokan (*bending*) dari ikatan kovalen dalam kebanyakan molekul dilewatkan dalam suatu cuplikan, maka molekul-molekul akan menyerap energi tersebut dan terjadi transisi diantara tingkat energi vibrasi dasar dan tingkat vibrasi tereksitasi. Namun tidak semua ikatan dalam molekul dapat menyerap energi infra merah meskipun mempunyai frekuensi radiasi sesuai dengan gerakan ikatan. Hanya ikatan yang mempunyai momen dipol dapat menyerap radiasi infra merah.

Cara kerja alat ini dengan menembak sampel menggunakan sinar infra merah dengan panjang gelombang sebesar 632.8 nm dan kemudian dibelokkan oleh optik yang memiliki kekuatan sebesar 0.1 mW. Hasil sinar pantul ini akan terbaca dalam bentuk grafik % transmitter vs panjang gelombang (wavelength).

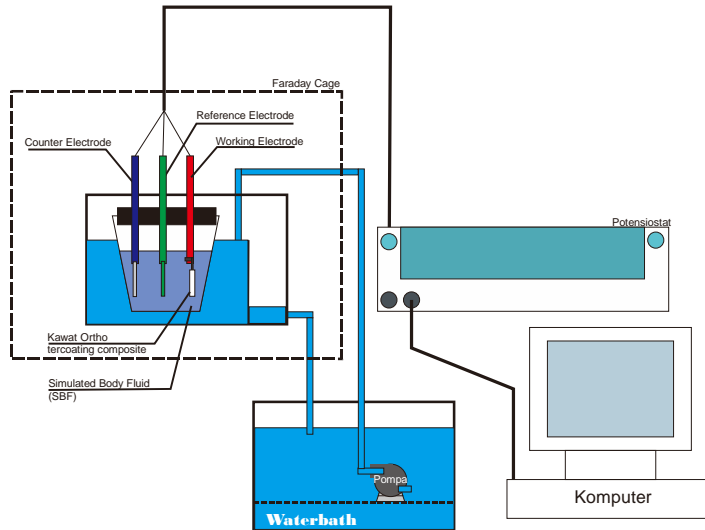
## 5. Polarisasi Linier (PGstat Autolab 302 N Metrohm)

Uji polarisasi linier bertujuan untuk mengetahui potensial korosi, arus korosi, serta besarnya laju korosi dari kawat *orthodontic* yang telah dilapisi oleh komposit HA –SiO<sub>2</sub> dan gelatin.

Pada uji polarisasi linier ini digunakan 3 elektroda yaitu kawat *orthodontic* yang telah dilapisi komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin sebagai *working electrode*, platina sebagai *counter electrode*, dan Ag/AgCl sebagai *reference electrode*. Ketiga elektroda ini dihubungkan dengan Potensiostat dan dilakukan polarisasi dalam larutan Ringer yang terdiri dari yang terdiri dari NaCl 8.6 g/L , KCl 0.3 g/L dan CaCl<sub>2</sub> 0.33 g/L. Saat proses polarisasi suhu dijaga 37°C dan potensial divariasi dari -0.1 sampai +0.1 V sehingga aliran arus saat terjadinya polarisasi bisa terukur. Hasil pengujian ini



ditampilkan dalam bentuk grafik tafel plot yang menghubungkan antara rapat arus dengan voltase pada elektroda kerja.



Gambar 3.6 Rangkaian Alat Uji Polarisasi linier dan *Electrochemical Impedance Spectroscopy* (EIS)

## 6. EIS (PGstat Autolab 302 N Metrohm, FRA2)

Uji *Electrochemical Impedance Spectroscopy* bertujuan untuk mengetahui kemampuan elemen sirkuit untuk menghambat aliran arus listrik dari kawat *orthodontic* yang telah dilapisi oleh komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin.

Pada uji EIS ini, prosedur percobaan yang dilakukan adalah sama dengan uji polarisasi linier dan alat yang digunakanpun sama. Dari uji EIS ini, akan diperoleh Nyquist plot dan bode plot. Dari Nyquist plot kemudian dilakukan fitting yang nantinya akan diperoleh model sirkuit yang sesuai. Dari sirkuit yang terbentuk dapat dilihat elemen apa saja yang berperan dalam proses yang menggambarkan proses yang terjadi dalam uji korosi, sehingga dapat diprediksi karakteristik lapisan komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin yang dicoating pada kawat *orthodontic*.

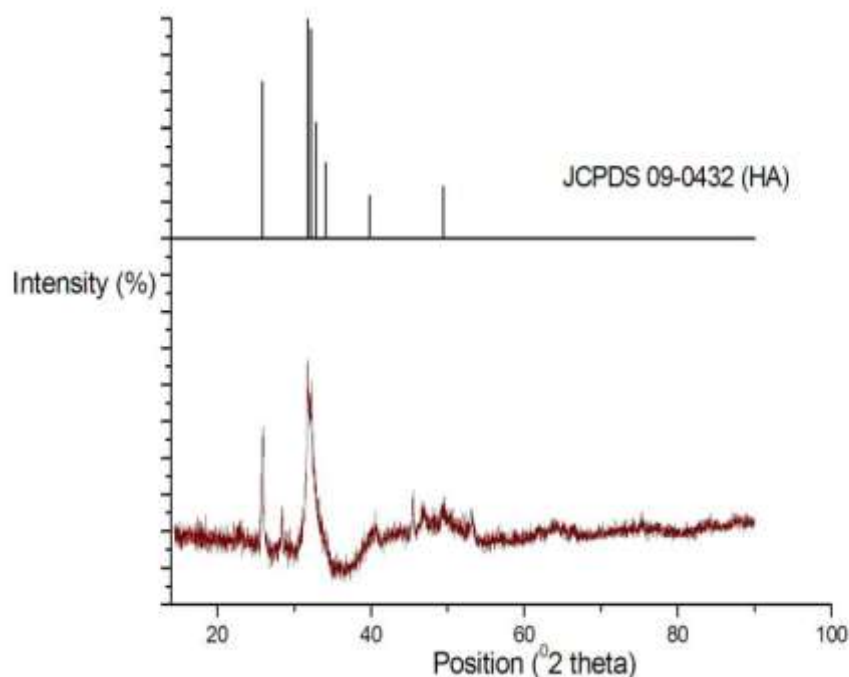
## BAB 4

### HASIL DAN PEMBAHASAN

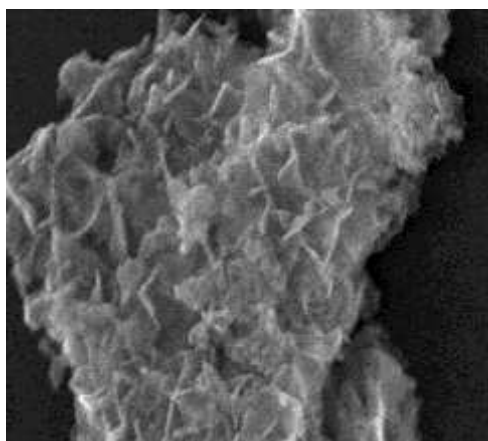
#### 4.1 Karakterisasi *Hydroxyapatite* untuk *Coating*

Hydroxyapatite (HA) yang digunakan untuk coating kawat orthodontic disintetis pada kondisi 6 volt selama 6 jam menggunakan elektroda karbon. Larutan yang digunakan terdiri dari  $\text{Na}_2\text{H}_2\text{EDTA} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , dan  $\text{CaCl}_2$  dengan konsentrasi  $\text{EDTA}/\text{PO}_4^{3-}/\text{Ca}^{2+}$  sebesar 0.25/0.15/0.25M. Karakteristik HA yang disintesis pada kondisi di atas akan diuraikan sebagai berikut

Partikel HA yang dihasilkan berupa serbuk halus berwarna putih. Pola difraksi sinar X di bawah (gambar 4.1) menggambarkan adanya puncak-puncak pada sudut  $25.87^\circ$ ,  $31.77^\circ$ ,  $32.19^\circ$ ,  $39.81^\circ$ , dan  $49.46^\circ$  yang sesuai dengan standar JCPDS HA (JCPDS 09-0432). Adanya puncak-puncak yang tajam dan sempit menunjukkan bahwa serbuk *hydroxyapatite* yang terbentuk merupakan kristal *hydroxyapatite*. Dan dari pencitraan SEM nampak partikel HA berbentuk hexagonal sesuai dengan penjelasan pada bab sebelumnya.



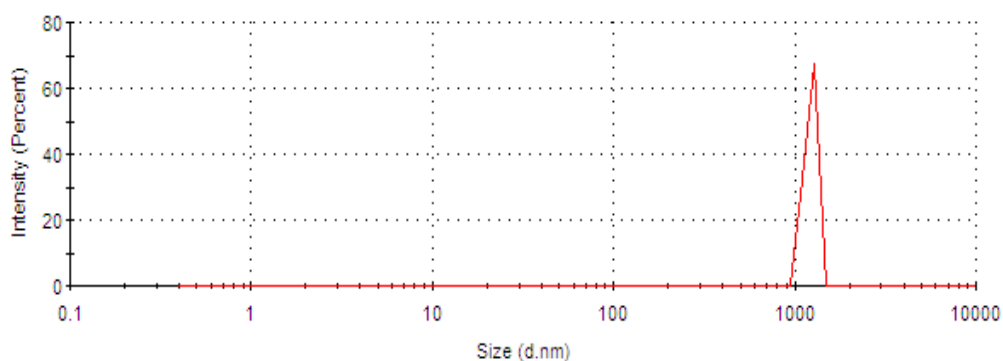
**Gambar 4.1.** Hasil analisa XRD serbuk *hydroxyapatite* dengan metode elektrokimia pada 6 V selama 6 jam



**Gambar 4.2.** SEM partikel HA

Serbuk hydroxyapatite yang akan digunakan sebagai coating mempunyai distribusi ukuran partikel sebesar 7248 nm yang merupakan hasil pengukuran dari Particle Size Analysis (PSA). Partikel HA berukuran 1-20 $\mu$ m masih masuk kategori baik digunakan sebagai coating (Besra dkk, 2006). Untuk ukuran yang lebih besar, masalah utama adalah partikel tersebut akan cenderung menetap di bawah akibat gravitasi. Sehingga akan sulit mendapatkan deposisi yang seragam karena suspensi tidak homogen. Idealnya mobilitas partikel karena elektroforesis harus lebih tinggi dari gravitasi.

Pengukuran PSA juga memberikan hasil bahwa HA memiliki sudut deviasi yang kecil yaitu sebesar 81.96 nm. Sudut deviasi yang kecil menunjukkan bahwa partikel HA yang didapatkan mempunyai ukuran partikel yang seragam. Keseragaman dari ukuran partikel nantinya akan mempengaruhi morfologi dari permukaan coating.



**Gambar 4.3.** Hasil analisa distribusi ukuran serbuk HA

## 4.2 Karakterisasi Alcosol Silika untuk Coating

SiO<sub>2</sub> yang digunakan untuk *coating* pada kawat orthodontic dengan komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin berbahan baku *waterglass* dengan pelarut air. Reaksi paling sederhana pembentukan hydrosol (silika yang terdispersi dalam air) dari *waterglass* yang dikontakkan dengan resin adalah:

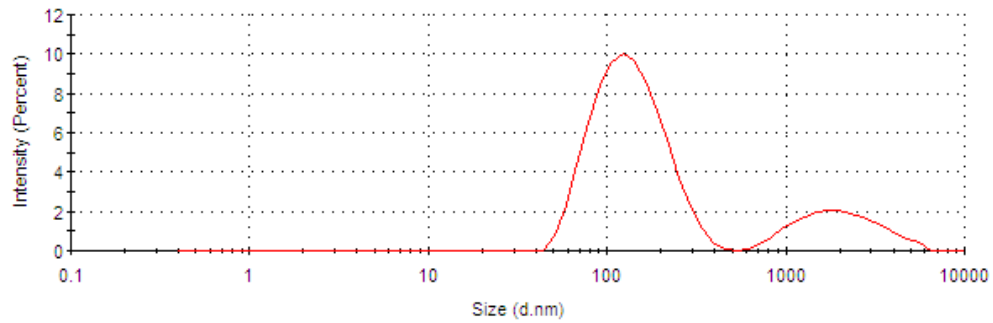


Kandungan SiO<sub>2</sub> dalam hydrosol yang telah dibuat mempunyai konsentrasi 2.5%wt dan sisanya adalah air. Kandungan air dalam hydrosol masih cukup tinggi, padahal dalam proses deposisi elektroforesis penggunaan air harus diminimalisir. Adanya air menyebabkan terjadinya reaksi reduksi air yang akan mengurangi efisiensi proses dan keseragaman deposit akibat munculnya gelembung yang dihasilkan dari reaksi reduksi air. (Plško dkk, 2014)

Untuk mengurangi timbulnya reaksi reduksi air maka hydrosol yang telah terbentuk dilarutkan ke dalam larutan organik berupaisopropanol yang sebelumnya telah ditambahkan asam asetat (stabilizer) sehingga menghasilkan alcosol yang mengandung sedikit air. Dalam pembuatan alcosol perbandingan volume antara isopropanol dan asam asetat yang ditambahkan adalah 2.5:1. Dalam alcosol asam asetat berguna untuk mencegah terjadinya aglomerasi partikel.

Dalam proses EDP alcosol juga berfungsi sebagai solvent, sehingga keberadaannya pun juga perlu diperhatikan. Faktor pendukung keberhasilan proses EDP adalah dengan menggunakan solvent yang stabil, tidak teraglomerasi, dan homogen.

Uji PSA dilakukan untuk mengetahui distribusi ukuran partikel dan nilai zeta potensial dari silika yang terkandung di dalam alcosol. Dari uji PSA yang dilakukan didapatkan distribusi ukuran partikel sebesar 144.5 nm dengan zeta potensial -1.26mV.

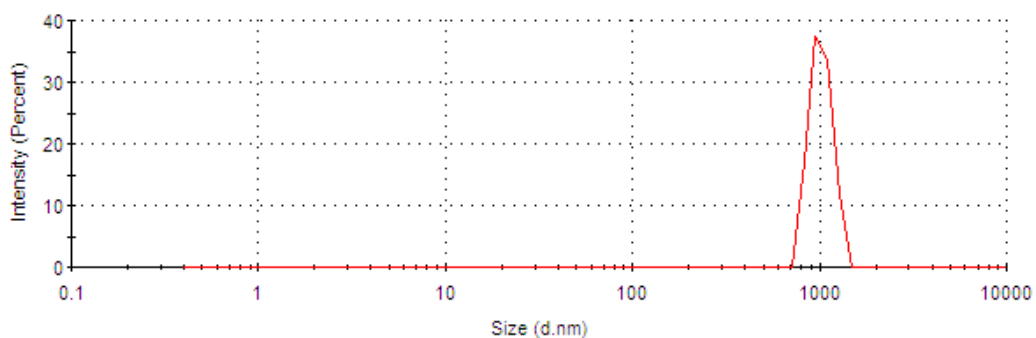


**Gambar 4.4.** Hasil analisa distribusi ukuran alcisol

### 4.3 Karakterisasi Komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin untuk coating

Pembuatan komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin yang akan digunakan sebagai coating dilakukan dengan mencampurkan serbuk HA dengan perbandingan konsentrasi tertentu ke dalam alcisol yang disertai dengan proses pengadukan. Selanjutnya ditambahkan gelatin yang sebelumnya telah dilarutkan terlebih dahulu di dalam asam formiat 1%.

Komposit yang akan digunakan memiliki distribusi ukuran partikel sebesar 1829 nm. Karena adanya pengadukan, menyebabkan partikel tersuspensi secara merata dan kemungkinan silika yang mengalami reaksi lanjutan akan menangkap sejumlah partikel HA. Partikel HA tersebut selanjutnya mengisi pori-pori silika sehingga menyebabkan ukuran partikelnya meningkat menjadi 1829 nm.



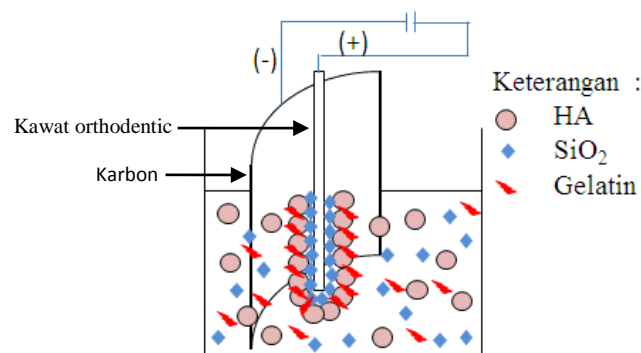
**Gambar 4.5.** Hasil analisa distribusi ukuran komposit

Selain ukuran partikel juga didapatkan nilai zeta potensial dari komposit yaitu -0.0355 mV. Zeta potensial berperan dalam menentukan arah dan migrasi kecepatan partikel selama proses EDP. Muatan negatif menunjukkan bahwa selama proses EDP berlangsung partikel akan cenderung bergerak menuju

elektroda yang bermuatan positif. Dalam kasus ini counter-ion mengelilingi elektroda negatif (katoda) membentuk difusi double layer sehingga bermuatan positif. Selanjutnya partikel HA yang bermuatan negatif akan bergerak menuju katoda (kawat orthodontic) yang telah membentuk double layer dan berhasil terdepositasi pada permukaan kawat orthodontic.

#### 4.4 Proses Deposisi Elektroforesis

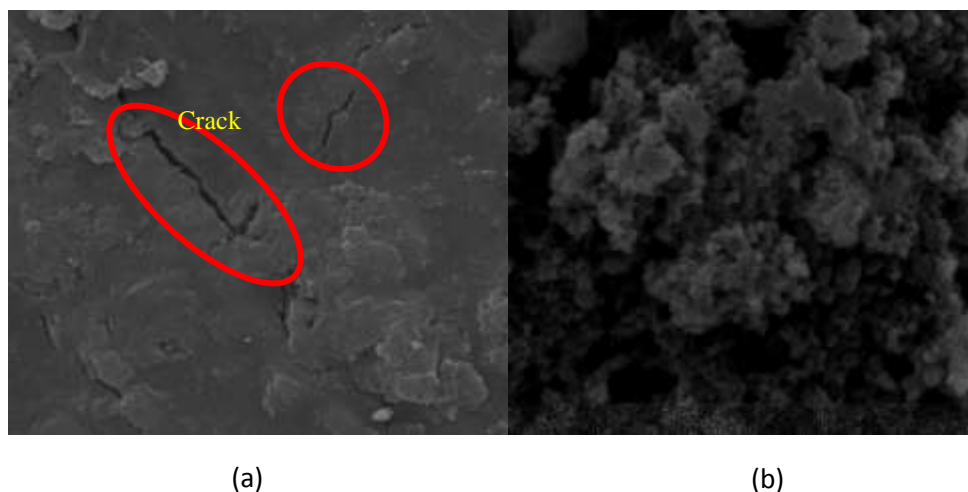
Dalam proses deposisi elektroforesis terdapat 2 tahapan, yaitu yang pertama elektroforesis dan dilanjutkan dengan deposisi. Pada tahap elektroforesis adanya medan listrik antara katoda (kawat orthodontic) dan anoda (karbon silinder) menyebabkan partikel dari komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin yang tersuspensi dalam larutan bergerak ke arah yang berlawanan dengan muatannya. Dari uji PSA menunjukkan bahwa komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin mempunyai nilai zeta potensial sebesar -0.0355 mV. Tanda negatif menunjukkan bahwa partikel komposit akan bergerak menuju elektroda yang bermuatan positif. Dalam kasus ini katoda yang mempunyai muatan negatif mengalami counter ion sehingga ion-ion positif yang berada disekelilingnya akan menempel pada katoda dan menyebabkan di katoda bermuatan positif. Pada tahap kedua partikel komposit akan terdepositasi pada permukaan kawat orthodontic yang dipasang di katoda.



**Gambar 4.6.** Gambar mekanisme EDP komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin

Proses deposisi diawali dengan menempelnya partikel SiO<sub>2</sub> yang mempunyai ukuran partikel lebih kecil yaitu sebesar 144.5 nm dan dilanjutkan dengan partikel HA yang mempunyai ukuran partikel sebesar 7248 nm. Partikel

kecil akan cenderung lebih mudah bergerak dibandingkan dengan partikel yang berukuran lebih besar sehingga lebih cepat menempel. Selanjutnya gelatin yang bersifat lentur dan elastis akan mengisi rongga-rongga diantara partikel HA dan SiO<sub>2</sub> yang tercoating pada kawat orthodontic menjadikan susunan partikel yang terdeposit lebih rapat sehingga coating komposit tersebut mempunyai sifat fisik yang lebih baik yaitu tidak adanya crack pada permukaan coating. Hal ini dapat dilihat dari pencitraan SEM gambar 4.7. Untuk *coating* komposit HA-SiO<sub>2</sub> tanpa gelatin terlihat adanya crack pada permukaan kawat. Berbeda untuk coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang ditambah gelatin tidak terdapat crack pada permukaan coating. Hal ini menandakan bahwa adanya gelatin mampu meningkatkan sifat fisik dari komposit HA-SiO<sub>2</sub>.



**Gambar 4.7.** Hasil uji SEM (a) coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> tanpa gelatin dan (b) coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> dengan gelatin

Secara kualitatif, bentuk morfologi permukaan dari coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin mempunyai permukaan yang rata dan tidak ada penebalan pada salah satu sisi. Seperti yang dijelaskan pada sub bab sebelumnya bahwa ukuran dan keseragaman ukuran partikel memiliki peranan yang cukup penting terhadap hasil coating. Partikel yang mempunyai ukuran seragam cenderung mempunyai kecepatan pergerakan yang sama, sehingga partikel dapat terdeposit dengan baik. Hal ini dapat dilihat pada gambar 4.8. Ada beberapa faktor yang mempengaruhi tebal tipisnya coating, diantaranya lama deposisi, konsentrasi hydrosol, dan

banyaknya HA yang ditambahkan. Hal ini akan dijelaskan pada sub bab berikutnya.



**Gambar 4.8.** Kawat *orthodentic* yang telah dicoating komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin

Daya rekat yang tinggi dari gelatin menjadikan gelatin ini sering dimanfaatkan sebagai material tambahan sebagai pengikat dan perekat di berbagai sektor. Dalam kasus ini sendiri adanya gelatin mampu meningkatkan daya rekat dari coating komposit HA-SiO<sub>2</sub>. Hal ini dapat terlihat dari uji kualitatif yang dilakukan dengan bantuan selotip. Selotip direkatkan pada permukaan coating yang selanjutnya ditarik dengan keras sampai lepas.



(a) Coating komposit tanpa gelatin



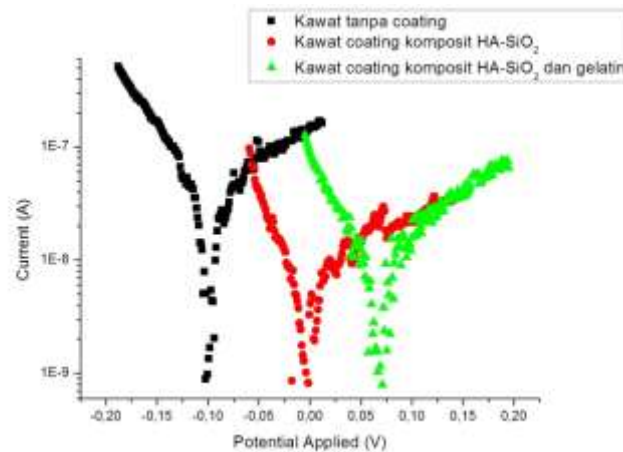
(b) Coating komposit dengan gelatin

**Gambar 4.9.** Hasil uji kualitatif kekuatan coating

Uji ini dilakukan dengan konsentrasi HA:SiO<sub>2</sub> yang sama yaitu 1:1, yang membedakan untuk gambar (a) komposit tidak ditambah gelatin sedangkan gambar (b) komposit ditambah gelatin dengan konsentrasi HA : SiO<sub>2</sub> : gelatin = 1: 1: 0.5. Dari uji sederhana ini didapatkan hasil bahwa pada coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> terjadi pengelupasan coating, sedangkan pada coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang ditambahkan gelatin tidak terjadi pengelupasan. Hal ini menandakan bahwa adanya gelatin mampu meningkatkan daya rekat komposit HA-SiO<sub>2</sub> pada permukaan kawat *orthodentic*.



Tingginya daya rekat coating diharapkan mampu meningkatkan ketahanan korosi dari coating itu sendiri. Untuk melihat pengaruh daya rekat terhadap ketahanan korosi dilakukan uji polarisasi linier.

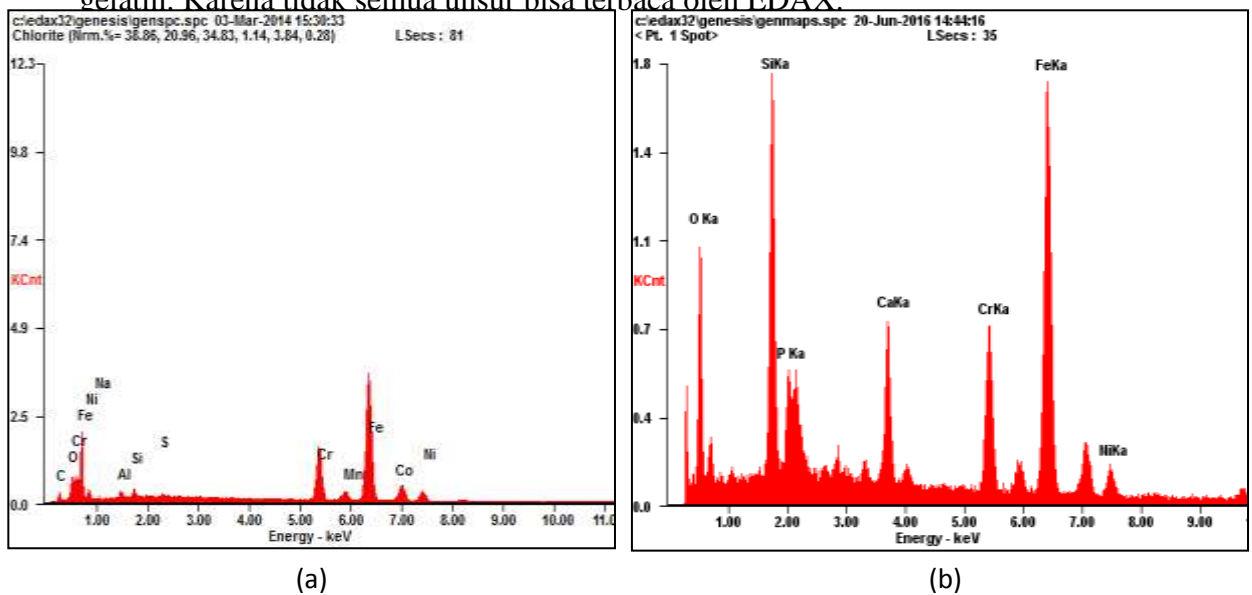


**Gambar 4.10.** Hasil uji Polarisasi Linier

Hasil uji polarisasi menunjukkan bahwa terjadi pergeseran potensial ke arah yang lebih positif untuk kawat yang di coating dibandingkan dengan kawat yang tanpa coating. Pergeseran ke arah yang lebih positif menandakan bahwa untuk mengkorosi kawat orthodontic dibutuhkan potensial yang lebih besar. Semakin besar potensial yang dibutuhkan untuk mengkorosi kawat maka semakin baik ketahanan kawat tersebut terhadap korosi. Hal ini menunjukkan bahwa adanya coating mampu menghambat dan melindungi logam dari korosi. Kemampuan (daya) rekat coating cukup berpengaruh terhadap ketahanan korosi. Dari gambar 4.9 terlihat bahwa untuk coating yang ditambahkan gelatin membutuhkan potensial yang lebih besar dibandingkan dengan yang tanpa ditambahkan gelatin. Semakin kuat rekatan coating maka semakin sulit menerobos suatu material menerobos coating.

Kawat orthodontic yang telah dicoating dengan komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang ditambahkan gelatin secara deposisi elektroforesis selanjutnya diuji dengan EDAX untuk mengetahui kemampuan gelatin mengikat komposit HA-SiO<sub>2</sub> pada permukaan kawat orthodontic. Coating dikatakan berhasil bila mengandung komponen penyusun dari komposit tersebut. Gambar 4.10 menjelaskan bahwa terjadi peningkatan jumlah Si yang cukup tinggi pada kawat yang dicoating dibandingkan dengan kawat tanpa coating. Selain itu muncul komponen Ca dan P

pada kawat yang *dicoating*. Dimana Ca dan P merupakan unsur penyusun *hydroxyapatite*. Dari tabel 4.1 dilakukan perhitungan ratio Ca/P untuk mengetahui jenis calsium fosfat yang berhasil *tercoating*. Dari hasil perhitungan didapatkan ratio Ca/P sebesar 1.624 yang merupakan ratio dari *hydroxyapatite*. Adanya peningkatan jumlah unsur Si dan munculnya unsur Ca dan P pada gambar hasil EDAX untuk kawat yang *dicoating* menandakan bahwa coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> telah berhasil dilakukan. Namun dari hasil uji EDAX tidak dijumpai adanya gelatin. Karena tidak semua unsur bisa terbaca oleh EDAX.



**Gambar 4.11.** Hasil analisa EDAX (a) kawat orthodontik sebelum *dicoating* dan (b) kawat orthodontik *dicoating* dengan komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang telah ditambah gelatin

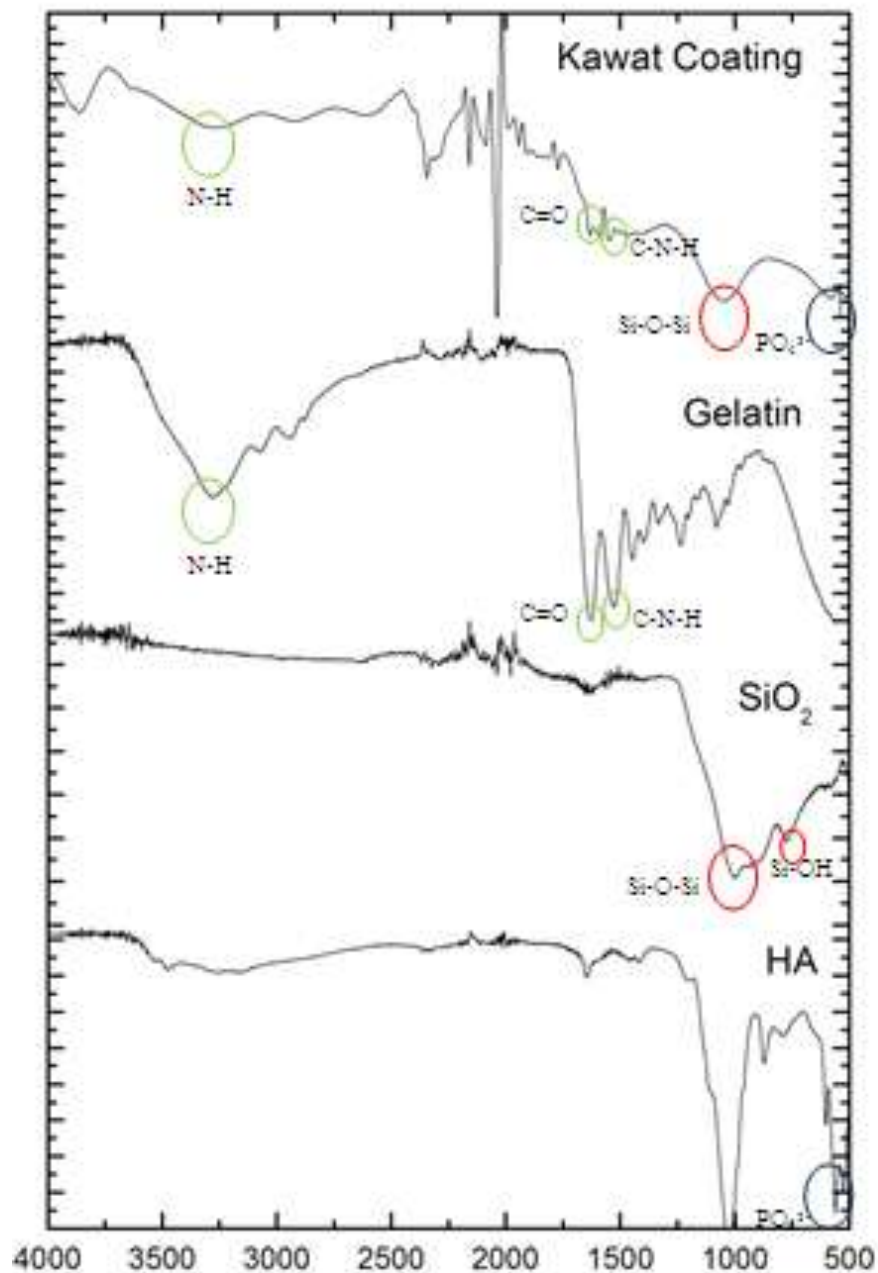
Komponen	Wt%	At%
O	15.80	34.95
Si	12.54	15.81
P	3.75	4.28

<b>Ca</b>	6.09	5.38
<b>Cr</b>	11.58	7.88
<b>Fe</b>	45.19	28.65
<b>Ni</b>	5.06	3.07

**Tabel 4.1.** Komposisi kawat orthodontik yang *dicoating* dengan komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin

Untuk melihat ada tidaknya gelatin dilakukan uji FTIR. Gelatin seperti umumnya protein memiliki struktur yang terdiri dari karbon, hidrogen, gugus hidroksil (OH), gugus karbonil (C=O), dan gugus amina (NH). Selain gelatin, FTIR juga dapat membaca gugus fungsi dari HA dan juga SiO<sub>2</sub>.

Spektra inframerah gambar 4.12. menunjukkan adanya gugus-gugus fungsi dari gelatin yaitu ditunjukkan dengan adanya vibrasi stretching pada gugus fungsi N-H pada bilangan gelombang 3267,72 cm<sup>-1</sup>. Streching C=O ditunjukkan oleh bilangan gelombang 1633,50 cm<sup>-1</sup>. Sedangkan puncak C-N-H banding ditunjukkan pada bilangan gelombang 1546,34 cm<sup>-1</sup>. Selain itu juga terdapat gugus siloksan pada panjang gelombang 1048.90 cm<sup>-1</sup> yang merupakan gugus dari SiO<sub>2</sub> serta terdapat vibrasi PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> yang merupakan gugus fungsi dari HA. Hal ini semakin menguatkan dugaan bahwa adanya gugus-gugus tersebut menandakan bahwa coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin telah berhasil dilakukan.

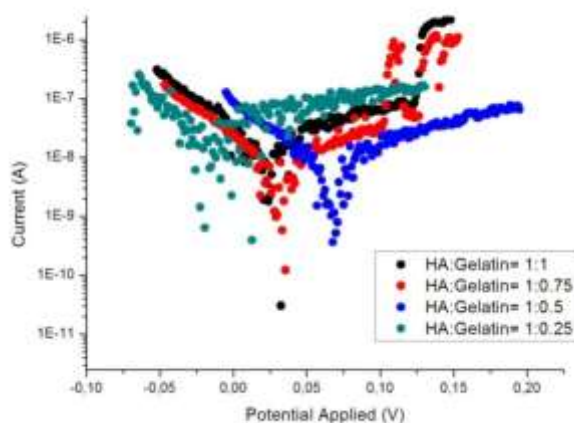


**Gambar 4.12.** Hasil uji FTIR kawat yang *dicoating* komposit HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin

#### 4.5 Pengaruh konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi

Pengaruh konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi dapat diketahui dengan uji polarisasi linier. Konsentrasi gelatin divariasikan mulai dari 0.25, 0.5, 0.75, dan 1 dengan menetapkan konsentrasi HA-SiO<sub>2</sub> yaitu 1:1. Dari hasil uji polarisasi linier terjadi pergeseran potensial ke arah yang lebih positif untuk gelatin dengan konsentrasi 0.5, namun untuk konsentrasi yang lebih tinggi lagi potensial cenderung bergeser ke arah yang lebih negatif. Pergeseran potensial ke

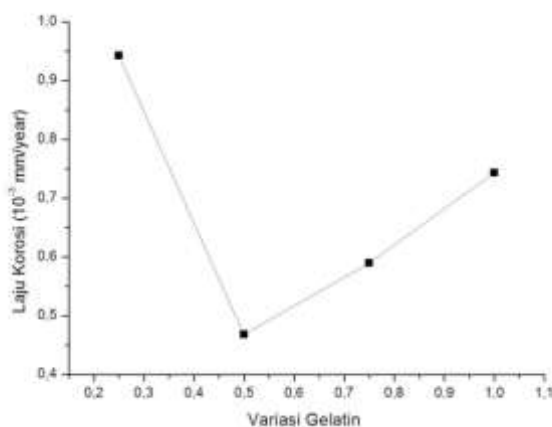
arah yang lebih positif menunjukkan bahwa dibutuhkan potensial yang lebih besar untuk mengkorosi kawat. Dari plot grafik anatar potensial vs arus didapatkan nilai laju korosi yang menurun untuk konsentrasi gelatin 0.5 yaitu sebesar  $0.4681 \times 10^{-3}$  mm/year selanjutnya untuk konsentrasi gelatin yang lebih tinggi lagi terjadi peningkatan laju korosi. Kecilnya nilai laju korosi menandakan bahwa ketahanan korosi kawat semakin baik.



**Gambar 4.13.** Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi

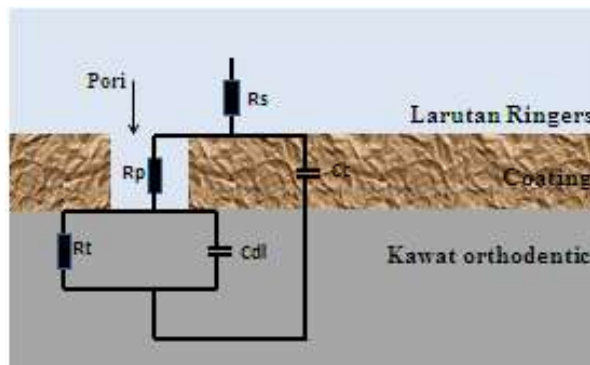
HA:Gelatin	1:0.25	1:0.5	1:0.75	1:1
<b>Hasil Perhitungan</b>				
<b>I corr (nA)</b>	18.1290	10.7080	13.4890	17.0030
<b>Laju Korosi (<math>10^{-3}</math> mm/year)</b>	0.94271	0.4681	0.58967	0.74329

**Tabel 4.2.** Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi



**Gambar 4.14.** Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi

Selain uji polarisasi linier juga dilakukan uji EIS. Uji secara elektrokimia untuk kawat ortodontik yang dilapisi dengan HA-SiO<sub>2</sub> dan gelatin ini didekati dengan model Randle (Gambar 4.15).

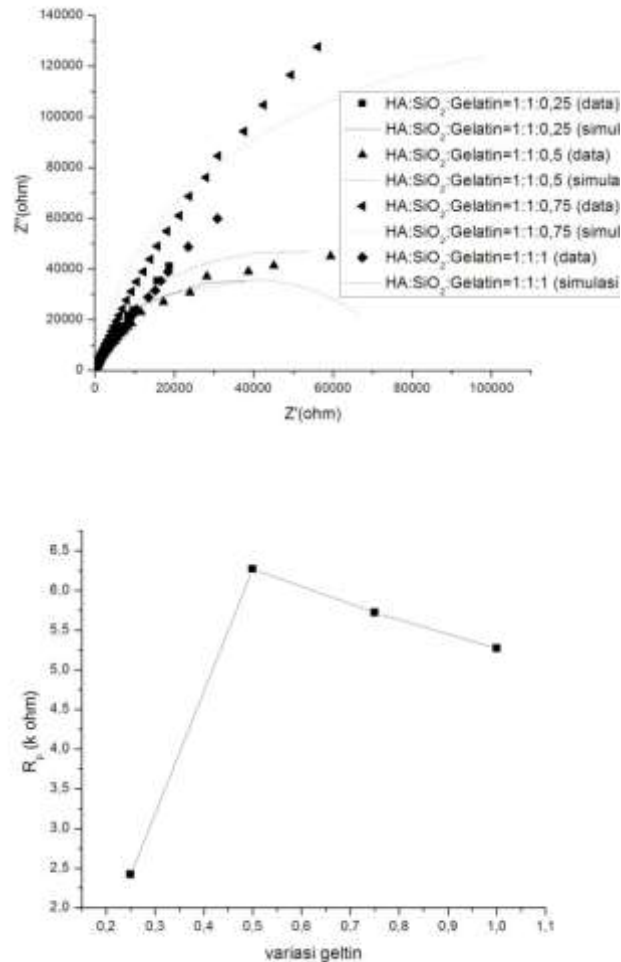


**Gambar 4.15** Gambar sirkuit untuk uji EIS kawat yang dicoating

Dalam kasus ini sirkuit terdiri 2 pasang paralel kapasitor dan resistor secara seri dengan resistan larutan.  $R_s$  adalah parameter hambatan (resistansi) larutan.  $R_p$  dan  $C_c$  masing-masing adalah resistansi pori di lapisan *coating* dan kapasitansi lapisan *coating*. Sedangkan  $R_t$  dan  $C_{dl}$  adalah resistansi transfer muatan dari *interface* substrat *coating* dan kapasitansi *interface*.  $R_p$  merupakan parameter utama untuk mengetahui karakteristik hasil *coating*. Semakin besar  $R_p$  maka semakin baik lapisan *coating* menutupi kawat *orthodontic*.

Gambar 4.25 memperlihatkan bahwa parameter  $R_p$  mula-mula naik dengan naiknya konsentrasi gelatin dan mencapai nilai maksimum pada konsentrasi gelatin 0.5 kemudian nilainya turun seiring dengan naiknya konsentrasi gelatin. Dengan semakin meningkatnya konsentrasi gelatin, maka komposit HA-SiO<sub>2</sub> akan semakin banyak yang berhasil menempel pada permukaan kawat sehingga pori-pori lapisan semakin tertutup. Tetapi ketika konsentrasi gelatin semakin dinaikkan, maka viskositas dalam suspensi juga meningkat. Dalam suatu proses *coating* (pelapisan), viskositas merupakan parameter pengendali utama yang harus diperhatikan. Semakin tinggi viskositas suspensi maka partikel sulit untuk terdistribusi secara merata dan cenderung menggumpal sehingga sulit

untuk bergerak. Hal ini menyebabkan komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang berhasil terdeposit pada permukaan kawat juga sedikit.

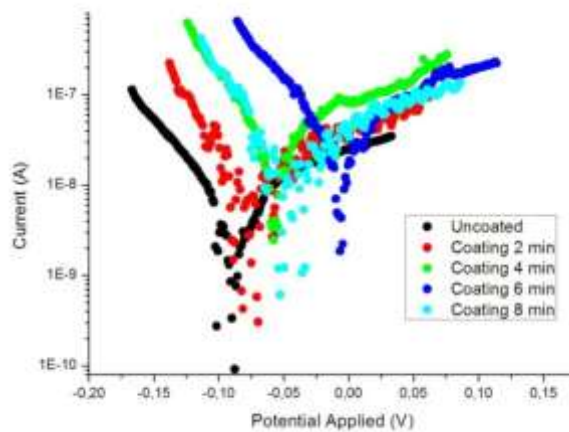


**Gambar 4.16.** Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh penambahan konsentrasi gelatin terhadap ketahanan korosi

Selain itu dalam penelitian ini juga dipelajari mengenai pengaruh lama proses deposisi elektroforesis terhadap ketahanan korosi, pengaruh konsentrasi hydrosol yang ditambahkan dalam larutan EDP, dan juga pengaruh konsentrasi hydroxyapatite terhadap ketahanan korosi. Untuk lebih jelaskan akan diuraikan sebagai berikut.

#### **Pengaruh Waktu Terhadap Hasil Deposisi Elektroforesis**

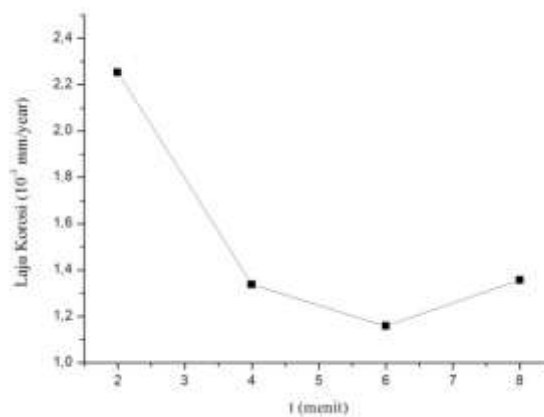
Elektroforesis deposisi dilakukan pada voltase 200 V dengan variasi waktu 2, 4, 6, dan 8 menit. Untuk mengetahui pengaruh waktu terhadap hasil elektroforesis deposisi dilakukan uji polarisasi linier.



**Gambar 4.17.** Hasil uji polarisasi linier pengaruh lama waktu EDP terhadap ketahanan korosi

t (menit)	2	4	6	8
<b>Hasil Perhitungan</b>				
<b>I corr (nA)</b>	58.3060	34.6200	29.9620	35.1080
<b>Laju Korosi (<math>10^{-3}</math> mm/year)</b>	2.2528	1.3376	1.1577	1.3565

**Tabel 4.3.** Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh lama waktu EDP terhadap ketahanan korosi



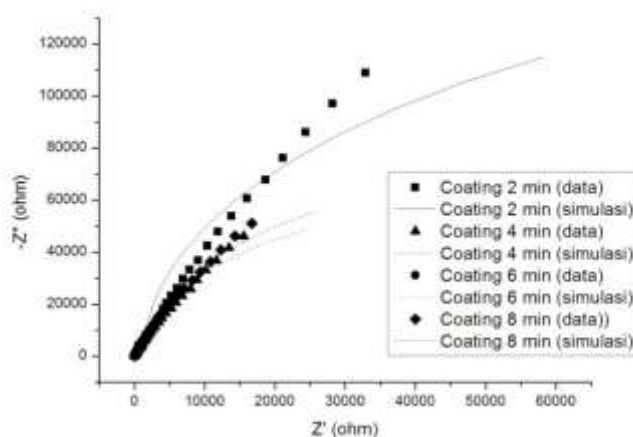
**Gambar 4.18.** Hasil uji polarisasi linier pengaruh lama proses EDP terhadap besarnya laju korosi

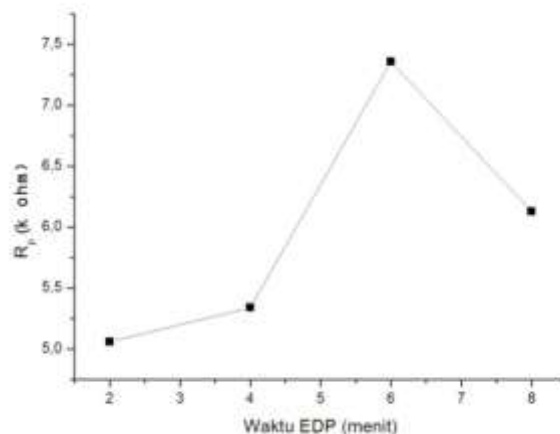
Gambar 4.17. menunjukkan hasil analisa polarisasi linier pada kawat tidak *dicoating* dan kawat yang *dicoating* selama 2, 4, 6, dan 8 menit. Data polarisasi linier ini dinyatakan dalam bentuk kurva Tafel. Dari gambar terlihat bahwa terjadi



pergeseran kurva polarisasi yang lebih positif pada kawat *orthodontic* yang *dicoating* seiring dengan lamanya waktu deposisi. Pergeseran kurva ke arah yang lebih positif atau anodik menunjukkan bahwa potensial yang dibutuhkan untuk mengkorosi kawat semakin besar yang berarti hasil *coating* semakin bagus. Namun pada menit ke 8 terjadi penurunan potensial. Dari hasil plot grafik polarisasi linier didapatkan nilai  $I_{corr}$  dan selanjutnya dilakukan perhitungan laju korosi yang hasilnya tertuang pada tabel 4.3. Besarnya nilai laju korosi semakin menurun seiring dengan bertambahnya waktu dan hasil terkecil didapatkan pada waktu EDP 6 menit yaitu sebesar 0.0011577 mm/year. Selanjutnya besarnya nilai laju korosi meningkat pada menit ke 8. Hal ini dikarenakan semakin lama waktu EDP semakin tebal lapisan *coating* dan pori-porinya juga semakin besarsehingga partikel menjadi tidak tersusun dengan baik. Hasil ini juga dikonfirmasi melalui hasil analisa *electrochemical impedance spectroscopy* EIS yang menunjukkan hasil yang selaras dengan polarisasi linier.

Hasil pengukuran EIS untuk melihat pengaruh variasi waktu EDP terlihat pada gambar 4.19. Resistensi ( $R_p$ ) yang paling besar ditunjukkan pada menit ke 6 yaitu sebesar 7.36 k $\Omega$  yang menunjukkan bahwa hasil *coating* bagus.

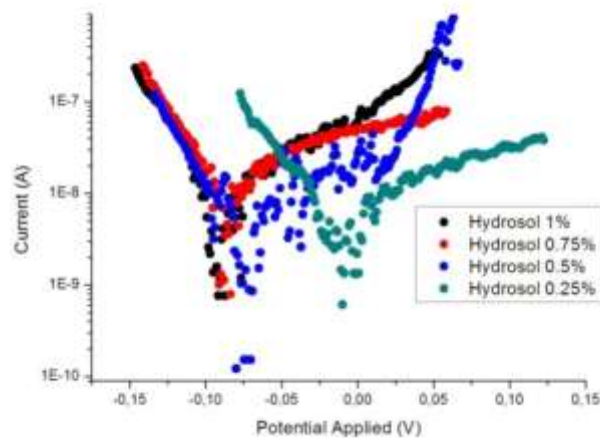




**Gambar 4.19.** Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh lama proses EDP terhadap ketahanan korosi

#### **Pengaruh konsentrasi hydrosol terhadap ketahanan korosi kawat**

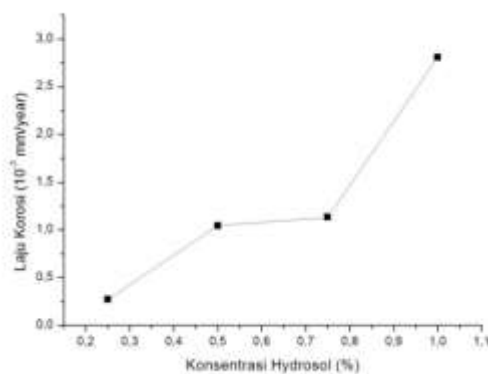
Seperti yang telah dijelaskan di awal bahwa sumber silika untuk komposit diperoleh dari sintesis sol silika yang berbahan dasar *waterglass*. Kandungan silika dalam hydrosol cukup kecil yaitu hanya 2.5%wt dan sisanya adalah air. Dalam proses EDP pemakaian air sangat diminimisir untuk menghindari terjadinya reaksi reduksi air. Untuk itu dibuat sol silika berpelarut isopropanol yang telah distabilisasi dengan asam asetat yang dikenal dengan istilah alcosol. Dalam pembuatan alcosol, hydrosol dengan variasi konsentrasi 1%, 0.75%, 0.5%, dan 0.25% dicampurkan ke dalam isopropanol yang telah ditambahkan asam asetat dengan perbandingan volume isopropanol:volume asam asetat sebesar 2.5:1.



**Gambar 4.20.** Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi hydrosol terhadap ketahanan korosi

Hydrosol (%)	0.25	0.5	0.75	1
<b>Hasil Perhitungan</b>				
<b>I corr (nA)</b>	10.5760	89.8430	51.3890	109.550
<b>Laju Korosi (<math>10^{-3}</math> mm/year)</b>	0.2710	1.044	1.3168	2.807

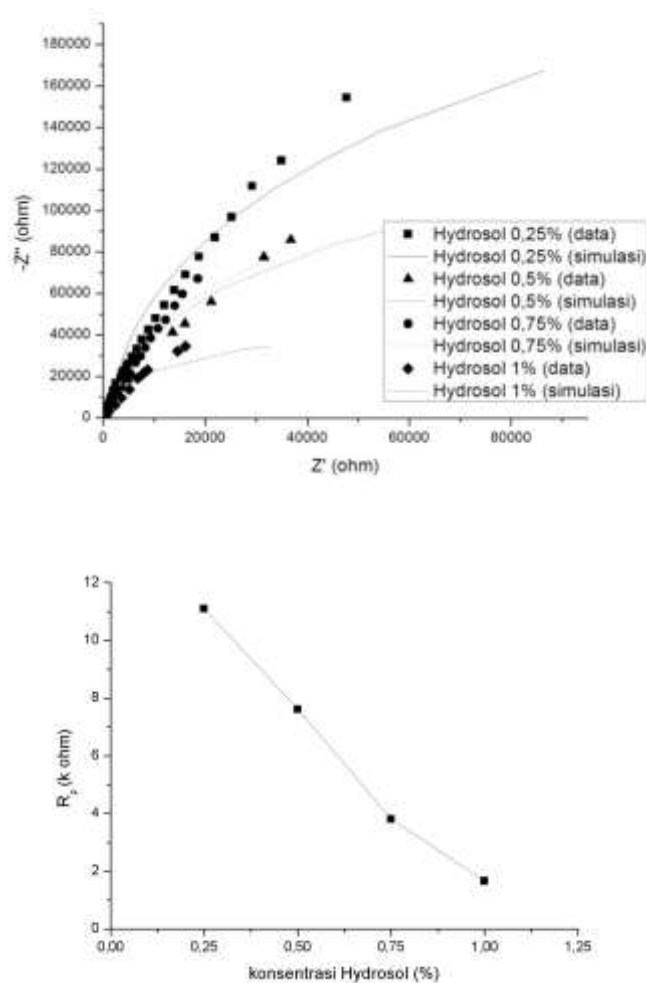
**Tabel 4.4.** Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi hydrosol terhadap ketahanan korosi



**Gambar 4.21.** Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi hydrosol terhadap besarnya laju korosi

Pada gambar 4.20. terlihat hasil uji polarisasi yang menunjukkan bahwa semakin kecil konsentrasi hydrosol memberikan hasil *coating* kawat yang semakin baik. Hal ini dikarenakan semakin kecil konsentrasi hydrosol maka air

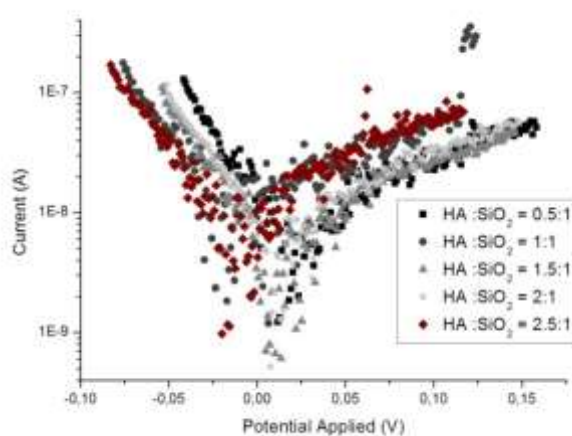
yang terkandung di dalamnya juga akan semakin kecil jumlahnya. Tabel 4.4. dan gambar 4.21. juga menunjukkan bahwa laju korosi dari coating juga semakin menurun seiring dengan berkurangnya konsentrasi hydrosol. Adanya air menyebabkan timbulnya reaksi reduksi air yang menyebabkan munculnya gelembung pada permukaan elektroda sehingga partikel yang akan terdeposit akan tertolak. Hal ini diperkuat dengan hasil analisa dan simulasi EIS (Gambar 4.22) yang menunjukkan nilai resistansi pori ( $R_p$ ) yang sangat kecil untuk hydrosol 1%. Nilai  $R_p$  meningkat seiring dengan penurunan kadar air dalam larutan total EDP.



**Gambar 4.22.** Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh penambahan konsentrasi hydrosol terhadap ketahanan korosi

**Pengaruh konsentrasi HA:SiO<sub>2</sub> terhadap ketahanan korosi kawat.**

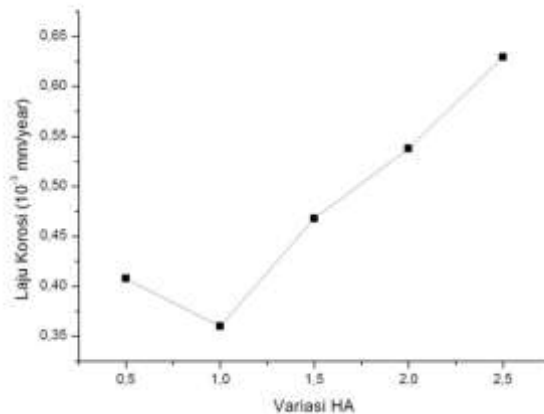
Konsentrasi partikel dalam suspensi mempunyai peranan yang sangat penting. Jika konsentrasi partikel dalam suspensi yang digunakan untuk EDP tinggi maka partikel yang akan terdeposit pada kawat mempunyai kecepatan yang sama. Kecepatan yang seragam ini menyebabkan partikel sulit untuk terdeposit ke kawat. Namun pada konsentrasi yang rendah pergerakan partikel tergantung pada pergerakan individu dari partikel itu sendiri, sehingga sedikit demi sedikit partikel akan mampu terdeposit di ruang kosong pada kawat sehingga permukaan kawat akan semakin tertutup. Hal ini bisa dilihat dari hasil uji polarisasi linier dan EIS.



**Gambar 4.23.** Hasil uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi *hydroxyapatite* terhadap ketahanan korosi

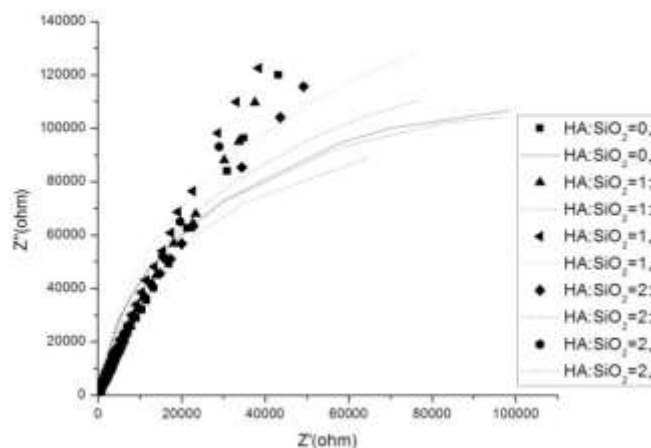
HA:SiO <sub>2</sub>	0.5:1	1:1	1.5:1	2:1	2.5:1
<b>Hasil Perhitungan</b>					
<b>I corr (nA)</b>	9.32330	8.23560	10.6980	12.3050	14.3950
<b>Laju Korosi (10<sup>-3</sup> mm/year)</b>	0.40757	0.36002	0.46766	0.53791	0.62928

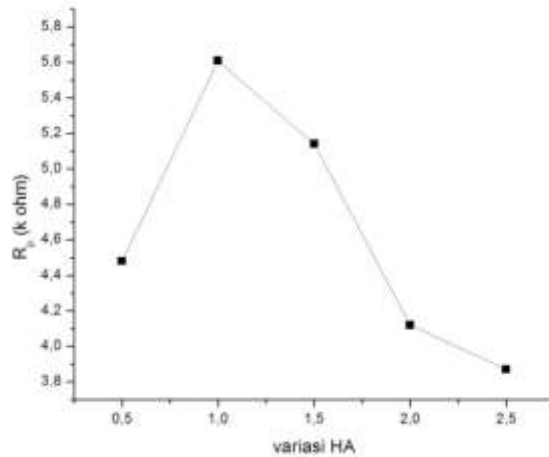
**Tabel 4.5.** Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi *hydroxyapatite* terhadap ketahanan korosi



**Gambar 4.24.** Hasil perhitungan uji polarisasi linier pengaruh penambahan konsentrasi *hydroxyapatite* terhadap ketahanan korosi

Semakin tinggi konsentrasi HA terhadap  $\text{SiO}_2$ , mula-mula semakin baik ketahanan korosinya, namun semakin tinggi konsentrasi *hydroxyapatite* yang ditambahkan ketahanan korosinya semakin menurun. Hal ini dapat dilihat dari gambar grafik polarisasi linier (gambar 4.23) bahwa terjadi pergeseran potensial ke arah yang lebih positif pada konsentrasi HA: $\text{SiO}_2 = 1:1$  namun ketika konsentrasi HA meningkat terjadi pergeseran potensial ke arah yang lebih negatif. Hal ini diperkuat dengan hasil pengukuran laju korosi yang tertera pada tabel 4.5 dan gambar 4.24. Pada perbandingan konsentrasi 1:1 memiliki laju korosi sebesar  $0.36002 \times 10^{-3}$  mm/year yang selanjutnya meningkat seiring dengan peningkatan konsentrasi HA yang ditambahkan. Tingginya laju korosi menandakan bahwa ketahanan coating terhadap korosi masih rendah.





**Gambar 4.25.** Hasil analisa dan simulasi EIS pengaruh penambahan konsentrasi *hydroxyapatite* terhadap ketahanan korosi

Selaras dengan uji polarisasi linier, pada uji EIS juga menunjukkan bahwa semakin tinggi konsentrasi HA terhadap  $\text{SiO}_2$ , mula-mula semakin besar nilai parameter  $R_p$  yang menunjukkan pori yang semakin kecil/sedikit. Hal ini menandakan bahwa partikel HA dapat mengisi pori-pori partikel yang dibuat oleh silika. Tetapi jika konsentrasi HA semakin dinaikkan, parameter  $R_p$  semakin kecil yang menunjukkan pori-pori lapisan *coating* semakin besar. Hal ini disebabkan konsentrasi tinggi partikel HA membuat semakin banyak pori-pori pada lapisan.

## BAB 5

### KESIMPULAN

Dari penelitian dan hasil analisa yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa,

1. Adanya gelatin mampu meningkatkan sifat fisik dari komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang ditandai dengan tidak adanya crack pada komposit yang ditambah gelatin yang digambarkan dari pencitraan SEM.
2. Gelatin mampu meningkatkan daya rekat coating komposit HA-SiO<sub>2</sub> yang dibuktikan dari uji kualitatif dengan bantuan gelatin
3. Daya rekat yang tinggi pada gelatin mampu meningkatkan ketahanan korosi dari kawat orthodontic. Dari uji polarisasi terlihat bahwa komposit HA-SiO<sub>2</sub> mempunyai laju korosi sebesar sebesar 0.00028179 mm/year dan ketahanan semakin meningkat ketika komposit tersebut ditambahkan gelatin yaitu sebesar 0.0004681 mm/year
4. Hasil EDAX menunjukkan bahwa adanya gelatin mampu mengikat komposit HA-SiO<sub>2</sub> pada permukaan kawat orthodontic yang ditandai dengan peningkatan jumlah unsur Si dan munculnya unsur Ca dan P dengan rasio Ca/P sebesar 1.624.
5. Dari uji FTIR terlihat puncak-puncak gugus fungsi gelatin. Vibrasi N-H stretching ditemukan pada bilangan gelombang 3267,72 cm<sup>-1</sup>, C=O stretching pada 1633,50 cm<sup>-1</sup> dan bending C-N-H pada 1546.34 cm<sup>-1</sup>. Selain itu juga ditemukan gugus fungsi dari SiO<sub>2</sub> yaitu munculnya siloksan pada panjang gelombang 1048.90 cm<sup>-1</sup> dan pada panjang gelombang 576.20 cm<sup>-1</sup> terdapat PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> yang merupakan gugus HA.
6. Semakin lama waktu EDP memberikan ketahanan korosi yang semakin baik, namun seiring dengan bertambahnya waktu ketahanan korosi cenderung semakin turun



7. Konsentrasi hydrosol yang semakin tinggi menyebabkan ketahanan korosi semakin kecil.
8. Semakin besar konsentrasi HA dan gelatin yang ditambahkan memberikan ketahanan korosi yang semakin baik, namun pada konsentrasi yang lebih tinggi lagi menyebabkan penurunan ketahanan korosi.

## DAFTAR PUSTAKA

- Banerjee, A., A, Bandyopadhyay and S.Bose; “Hydroxyapatite Nanopowders: Synthesis, Densification and Cell-Materials Interaction,” *Mater.Sci.Eng.C.*, **27**, 729-735 (2007)
- Besra, L. dan Liu, M; “A review on fundamentals and applications of electrophoretic deposition (EPD)”, *Prog. Mater Sci.*, **52**, 1-61 (2007)
- Bohner, M; “Calcium orthophosphates in medicine: from ceramics to calcium phosphate cements”, *Injury*, **31**, D37-47 (2000)
- Dorozhkin, S. V; “Bioceramics of calcium orthophosphates”, *Biomaterials*, **31**, 1465-1485 (2010a),
- Fathi, M. And A. Hanifi; “Evaluation and Characterization of Nanostructure Hydroxyapatite Powder Prepared by Simple Sol-Gel Method,” *Mater.Lett.*, **61**,3978-3983 (2007)
- Gibson, I.R., Best, S.M., dan Bonfield, W; “Chemical characterization of silicon-substituted hydroxyapatite”, *J. Biomed. Mater. Res.*, **44**, 4, 422-428 (1999),
- Gopi, D., Prakash, V.C.A., dan Kavitha, L; “ Evaluation of hydroxyapatite coatings on borate passivated 316L SS in Ringer's solution”, *Mater. Sci. Eng., C*, **29**, 955–958 (2009)
- Hermanto, S., Ode, La., dan Fatimah, W; “Differentiation of Bovine and Porcine Gelatin Based on Spectroscopic and Electrophoretic Analysis”, *J. Food Pharm. Sci.*, **1**, 68-73 (2013)
- Nasiri-Tabrizi, B., P. Honarmadi, J. Arenas and V. Castano; “Electrochemical Synthesis of Nanoized Hydroxyapatite,” *J. Mater. Sci.*, 41, 2141-2144 (2006)
- Nur, Adrian., dan Setyawan, Heru; “ An Experimental and Theoretical Investigation of the Formation of Hydroxyapatite Particles by an Electrochemical Method”, *Research Paper .*, **49**, 144–151 (2016)

- Plško A, Pagacova J, Sulcova J, Bielikova B; “Nanocomposite Films Prepared From Stabilized Aqueous SiO<sub>2</sub> Sols, *J. Non-Crystalline Solids*, **401**, 129-133 (2014).
- Tomozowa, M. and S. Hiroto; Microstructure of Hydroxyapatite and Octacalcium Phosphate-Coatings Formed on Magnesium by a Hydrothermal Treatment at Various pH Values,” *Acta Mater.*, **59**, 355-363 (2011)
- Tripathi, G. and Basu, B, “A Porous Hydroxyapatite Scaffold for Bone Tissue Engineering: Physico-Mechanical and Biological Evaluations,” *Ceram. Int.*, **38**, 341-349 (2012)
- Xin, R., F. Ren and Y. Leng; “Synthesis and Characterization of Nano-Crystalline Calcium Phosphates with EDTA-Assisted Hydrothermal Method,” *Mater. Des.*, **31**, 1691-1694 (2010)
- Zhitomirsky I, Granfield K; “ Electrophoretic hydroxyapatite coatings and fibers”, *Materials Letter*, **42**, 262-271 (2000)

## BIODATA PENULIS



Penulis dilahirkan di kota Kediri Jawa Timur dan merupakan anak bungsu dari 5 bersaudara. Penulis menempuh pendidikan formal tingkat SD hingga SMU di Kota Kediri kemudian melanjutkan pendidikan Strata 1 di “Kota Pahlawan” Surabaya pada Jurusan Teknik Kimia ITS. Penulis menyelesaikan pendidikan S-1 pada tahun 2013 dengan judul tugas akhir “Peningkatan Jumlah Amine yang Tercangkok pada Silika Gel dari Abu *Bagasse* dengan Memperbesar Pori Menggunakan *Template* PEG” dan pada tahun 2014 penulis mendapat kesempatan melanjutkan pendidikan program Magister melalui beasiswa Fresh Graduate dari Kementerian Riset, Teknologi, dan Pendidikan Tinggi serta mendapatkan pendanaan untuk penelitian tesis dari Lembaga Pengelola Dana Pendidikan (LPDP). Berkat rahmat Allah SWT, penulis berhasil menyelesaikan Tesis pada tahun 2016 yang berjudul “Deposisi Elektroforesis untuk Membuat Lapisan Komposit *Hydroxyapatite* pada Kawat *Orthodontic*” di Laboratorium Elektrokimia dan Korosi. Apabila ada kritik dan saran yang membangun tentang penelitian ini, maka pembaca dapat menghubungi penulis via email: [shiyama.nur@gmail.com](mailto:shiyama.nur@gmail.com)